

**Untersuchung des resonanten Verhaltens
exzitonischer Polaritonen in ZnO mit
Ellipsometrie**

**Den Naturwissenschaftlichen Fakultäten
der Friedrich-Alexander-Universität
Erlangen-Nürnberg**

**zur
Erlangung des Doktorgrades**

**vorgelegt von
Irmtraud Munder
aus Stuttgart
1985**

Untersuchung des resonanten Verhaltens
exzitonischer Polaritonen in ZnO mit
Ellipsometrie

Den Naturwissenschaftlichen Fakultäten
der Friedrich-Alexander-Universität Erlangen-Nürnberg

zur

Erlangung des Doktorgrades

vorgelegt von
Irmtraud Munder
aus Stuttgart

Ich sprach auch mit vielen Leuten und hörte
genau zu und hörte viele Meinungen
Und hörte viele von vielem sagen: das sei ganz
sicher!
Aber zurückkehrend sprachen sie anders, als sie
ehedem gesprochen hatten
Und von dem andern sagten sie: das ist sicher.
Da sagte ich mir: von den sicheren Dingen
Das Sicherste ist der Zweifel.

B. Brecht
Mann ist Mann

Als Dissertation genehmigt von den Naturwissenschaftlichen
Fakultäten der Universität Erlangen-Nürnberg

Tag der mündlichen Prüfung: 11.2.1985

Vorsitzender der Promotionskommission:

Professor Dr. K. Brodersen

Erstberichterstatter:

Professor Dr. R. Helbig

Zweitberichterstatter:

Professor Dr. K. Hümmer

Inhaltsverzeichnis

	Seite
1. Einleitung	1
2. Exzitonische Polaritonen in ZnO	3
2.1 Wannierexzitonen	4
2.2 Bandstruktur und Symmetrie	5
2.2.1 Vielteilchenkorrektur	8
2.2.2 k-lineare Wechselwirkung	9
2.3 Exzitonische Polaritonen	11
2.4 Dielektrische Funktion für exzitonische Polaritonen	12
2.4.1 isolierte Resonanz	12
2.4.2 gekoppelte Resonanz	13
3. Dielektrischer Tensor und Polarisationswellen in uniaxialen Kristallen	
3.1 Einleitung	14
3.2 der dielektrische Tensor $\epsilon(\omega)$	13
3.3 der dielektrische Tensor $\epsilon(\omega, \underline{k})$	18
3.4 mögliche Ausbreitungsmoden exzitonischer Polaritonen	22
3.4.1 richtungsunabhängiger Fall	23
3.4.2 richtungsabhängiger Fall	25
4. Reflexion exzitonischer Polaritonen	
4.1 Einleitung	29
das Problem der zusätzlichen Randbedingungen	
4.2 Dreischichtenmodell mit effektivem Brechungsindex	34
4.3 Berechnung der Reflexionskoeffizienten	34
isolierte Resonanzstelle	
4.4 Berechnung des Reflexionskoeffizienten	47
gekoppelte Resonanzstelle	

4.4.1 richtungsunabhängiger Fall	48
4.4.2 richtungsabhängiger Fall	52
4.5 Diskussion des Einflusses der Parameter d , Γ , M	57
4.5.1 auf den Brechungsindex	57
4.5.2 auf das Reflexionsvermögen	62
4.6 der exzitonische Brewster-Effekt	72
5. Ellipsometrie	
5.1 Einleitung	74
5.2 Jones-Formalismus zur Beschreibung elektromagnetischer Wellen	77
5.3 Optische Komponenten und Reflexion in Jones-Darstellung	79
5.4 Reflexionsellipsometrie	82
5.4.1 Ellipsometergleichungen für das PSA-Verfahren	83
6. Experimenteller Aufbau	
6.1 Versuchsaufbau	87
6.2 Justierung	89
6.3 Probenpräparation	91
6.4 Auswertung	91
7. Experimentelle Ergebnisse	
7.1 Einleitung	93
7.2 isolierte Resonanz des C-Exzitons	94
7.3 gekoppelte Resonanz des A,B-Exzitons	101
7.4 sonstige Messungen	116
8. Diskussion	
8.1 Fitparameter	117
8.2 Vergleich mit anderen Materialien	120
8.3 Ausblick	122

Zusammenfassung	123
Literaturverzeichnis	125
Danksagung	132
Lebenslauf	133



Digitized by the Internet Archive
in 2026

https://archive.org/details/IA41546226_0015

1. Einleitung

Exzitonische Polaritonen sind elementare Anregungen des Festkörpers, die durch die Wechselwirkung zwischen Licht und Exzitonen im Kristallgitter entstehen. Aus dem exzitonischen Anteil resultieren zwei wichtige Eigenschaften des exzitonischen Polaritons

- die räumliche Dispersion, d.h. die Wellenvektorabhängigkeit der Eigenenergie
- die räumliche Ausdehnung.

Die räumliche Dispersion, die vor allem in II-VI-Halbleitern ausgeprägt ist, erlaubt die Koexistenz von zwei oder mehr Polaritonmoden im Kristall. Die Frage nach dem Amplitudenverhältnis dieser Polaritonmoden bei der Ankopplung an ein äußeres Photon führt zum Problem der zusätzlichen Randbedingungen (ABC), das in den letzten zehn Jahren ausführlich theoretisch und experimentell untersucht wurde (s.z.B. /1.1/ - /1.8/) ohne daß sich eine Evidenz für eine bestimmte Formulierung ergeben hätte.

Eine Folge der räumlichen Ausdehnung des Exzitons ist dessen Beeinflussbarkeit durch Bildladungspotentiale an der Oberfläche /1.1/ und durch eine quantenmechanische Potentialbarriere /1.9/. Daraus leitet sich die Forderung nach einer intrinsischen exzitonenfreien Randschicht ab. Eine weitere Konsequenz aus der räumlichen Ausdehnung ist die Wirkung elektrischer Felder auf die exzitonischen Eigenschaften /1.10/ - /1.12/. Sie können die Struktur des Reflexionsspektrums völlig verändern.

Wesentlich zum Verständnis exzitonischer Polaritonen hat die Messung der Frequenzdispersion im k -Raum durch resonante Brillouinstreuung /1.13/ und für den Bereich der nichtlinearen optischen Eigenschaften durch resonante Zwei-Photonen-Raman-Streuung beigetragen /2.14/.

Durch die Linienformanalyse von Reflexionsspektren wurde der Einfluß von räumlicher Dispersion, exzitonenfrier Randschicht und elektrischen Feldern an der Oberfläche bestätigt /1.15/, /1.16/, /1.17/.

Aus der Messung der reflektierten Intensität allein gewinnt man jedoch nur die Hälfte der Information, die ein Reflexionsexperiment beinhaltet. Die andere Hälfte, getragen von der Phase der reflektierten Lichtwelle, wurde durch phasenempfindliche Reflexionsmessungen in den letzten Jahren erschlossen. Sie erweiterten das Verständnis der optischen Eigenschaften von Polaritonen durch den Nachweis eines exzitonischen Brewster-Effekts /1.18/ und ermöglichten die Messungen von natürlicher optischen Aktivität /1.19/ (d.h. des Einflusses k -linearer Terme) und Gyrotropie /1.20/ in hexagonalen Kristallgittern.

Ziel der vorliegenden Arbeit ist es, für die phasenempfindliche Reflexionsmessung eine neue Modells substanz, ZnO , zu erschließen, die die Besonderheit einer gekoppelten Resonanzstelle aufweist. Zum anderen soll die Meßmethode geprüft werden, ob sie eine experimentelle Evidenz für oder gegen eine Form der ABC's liefern kann, also ein "experimenten crucis" darstellt, und inwieweit der Zustand einer realen Oberfläche phasenempfindlichen Messungen zugänglich ist.

2. Exzitonische Polaritonen in ZnO

Der Grundzustand des Elektronensystems kristalliner Halbleiter kann in Einteilchennäherung durch einen Satz vollständig besetzter Energieniveaus ($(n-1)$ -Elektronensystem) beschrieben werden, die durch eine endliche Energiedifferenz von einem weiteren Satz vollständig unbesetzter Zustände ($(n+1)$ -Elektronensystem) getrennt sind. Führt man einem Elektron ausreichend Energie zu, kann es in diesem Bild in ein unbesetztes Niveau überwechseln. Dadurch wird aber nicht der angeregte Zustand des N -Elektronensystems eines Halbleiters beschrieben.

Die Quanten dieser angeregten Zustände des Elektronenproblems heißen Exzitonen. Ihre Wellenfunktionen besitzen wegen der Translationsinvarianz des Systems die volle Symmetrie der Translationsgruppe des Kristalls.

Das elektrische Dipolmoment der Exzitonen kann im Festkörper mit dem elektrischen Feld einer elektromagnetischen Welle wechselwirken. Die Quanten des gekoppelten Systems aus Exzitonenfeld und Photonenfeld heißen exzitonische Polaritonen.

In den folgenden Abschnitten werden zuerst die wichtigsten exzitonischen Eigenschaften in Wannier-Näherung hergeleitet, um damit ein semiklassisches Modell für die exzitonischen Polaritonen aufzustellen.

2.1 Wannierexzitonen

Für Exzitonen in ZnO hat sich die Näherung der Wannier-exzitonen als zweckmäßig erwiesen. Sie enthält folgende Voraussetzungen:

- Kenntnisse der Einteilchenzustände des Bändermodells für Elektronen und Loch (effektive Massen, Einteilchenenergien)
- Existenz einer Elektron-Loch-Wechselwirkung in Form eines abgeschirmten Coulombpotentials.

Die Symmetrie der Exzitonenwellenfunktion Φ_{ex} ist durch die Symmetrie der Wellenfunktion vom Valenz- und Leitungsband Ψ_v und Ψ_c , sowie der Enveloppefunktion $F_{\text{nlm}}(r)$ bestimmt

$$\Phi_{\text{ex}} = F_{\text{nlm}}(r) \Psi_v \Psi_c \quad 2.1$$

Die Enveloppefunktion Ψ_{env} ist Lösung der "Wasserstoff-Schrödingergleichung"

$$\left(-\frac{\hbar^2}{2\mu} \nabla^2 - \frac{e^2}{\epsilon_{\infty} r}\right) F_{\text{nlm}}(r) = E_n F_{\text{nlm}}(r) \quad 2.2$$

mit	$\frac{1}{\mu} = \frac{1}{m_e} + \frac{1}{m_h}$ $r = r_e + r_h$ ϵ_{∞}	m_e, m_h Masse von Elektron und Loch r_e, r_h Relativkoordinaten von Elektron und Loch Hintergrund-DK
-----	---	---

Um Reflexionsmessungen erklären zu können, wird dem Einteilchen-Hamiltonian die Austauschwechselwirkung als Störung hinzugefügt.

2.2 Bandstruktur und Symmetrie

Ausgehend von den Atomzuständen entsteht das Leitungsband in ZnO aus den 4s-Zuständen des Zinks der Symmetrie Γ_1 . Die Valenzbänder werden in der tight-binding-approximation aus den 2p-Zuständen des Sauerstoffs hergeleitet.

Wir erwarten nun bei einem Leitungsband und den nicht entarteten Valenzbändern 3 Exzitonenserien.

Berücksichtigt man die Spinstellung von Elektron und Loch, erhält man für die Quantenzahl $n=1$ zu jeder Serie 4 entartete Wellenfunktionen, insgesamt also 12 Exzitonen (s.z.B. J.O Dimmock /2.1/).

Die Entartung der 2p-Zustände des Sauerstoffs wird durch die Kristallfeldaufspaltung aufgehoben. Das Kristallfeld sortiert die p-Zustände nach der z-Komponente des Bahndrehimpulses l_z , es entstehen zwei Valenzbänder, für $l_z=1$ (Symmetrie Γ_5) und $l_z=0$ (Symmetrie Γ_1).

Die schwach negative Spin-Bahn-Wechselwirkung liefert eine Aufspaltung nach der z-Komponente des Gesamtdrehimpulses; wir erhalten dann, angeordnet in Richtung fallender Energie, die spinentarteten Valenzbänder $J_z=\frac{1}{2}$ (Symmetrie Γ_7 , A-Band), $J_z=\frac{3}{2}$ (Symmetrie Γ_9 , B-Band) $J_z=\frac{1}{2}$ (Symmetrie Γ_7 , C-Band).

$$(\Gamma_5 + \Gamma_1) * D_{1/2} = \Gamma_7 + \Gamma_9 + \Gamma_7$$

Aus der Kombination der Spineigenfunktion $D_{1/2}$ mit der s-Wellenfunktion (Γ_1) des Leitungsbandes ergibt sich die Gesamtsymmetrie Γ_7

$$\Gamma_1 \times D_{1/2} = \Gamma_7 \quad 2.4$$

Die Symmetrie des Exzitons entnimmt man dem Multiplikationstabelle für die irreduzible Darstellung als Produkt aus Valenz-, Leitungsband- und Envelopefunktion Γ_1 (s. z.B. Koster et al /2.2/)

$$(\Gamma_7 * \Gamma_7) * \Gamma_1 = (\Gamma_1 + \Gamma_2 + \Gamma_5) * \Gamma_1 \quad 2.5$$

$$(\Gamma_7 * \Gamma_9) * \Gamma_1 = (\Gamma_5 + \Gamma_6) * \Gamma_1$$

Aus der Darstellung 2.5 können die Auswahlregeln für die optischen Übergänge hergeleitet werden. Aus

$$\Gamma(\text{Loch}) \times \Gamma(\text{Elektron}) \times \Gamma(\text{Envelope}) = \sum_{\alpha} C_{\alpha} \Gamma_{\alpha}(\text{Exziton}) \quad 2.6$$

findet man die Darstellung der Exzitonwellenfunktion; ist unter den Γ_{α} die Darstellung Γ_1 des Dipoloperators mit der Polarisationsrichtung der einfallenden Lichtwelle, so ist der Übergang dipol erlaubt. Sonst ist er in der ersten Ordnung der Störungsrechnung dipol verboten.

Valenz- band	Wellen- funktion	Einteilchen- quantenzahlen	Dar- stellung	ΔJ_z	Dipol- übergang	Spinflip	Osz.-stärke
A	$\frac{1}{\sqrt{2}}(p_x + ip_y) S \uparrow$	$S_{so} = +1/2$ $L_{sh} = +1, S_{sh} = -1/2$	$A \Gamma_5$	+ 1	$\perp$	nein	groß
	$\frac{1}{\sqrt{2}}(p_x - ip_y) S \downarrow$	$S_{so} = -1/2$ $L_{sh} = -1, S_{sh} = +1/2$	$A \Gamma_5$	- 1	$\perp$	nein	groß
	$\frac{1}{\sqrt{2}}(p_x + ip_y) S \downarrow$	$S_{so} = 1/2$ $L_{sh} = 1, S_{sh} = -1/2$	$A \Gamma_3$	0	$\parallel$	ja	klein
	$\frac{1}{\sqrt{2}}(p_x - ip_y) S \uparrow$	$S_{so} = -1/2$ $L_{sh} = -1, S_{sh} = 1/2$	$A \Gamma_2$	0	verboten	ja	klein
B	$\frac{1}{\sqrt{2}}(p_x + ip_y) S \downarrow$	$S_{so} = -1/2$ $L_{sh} = 1, S_{sh} = 1/2$	$B \Gamma_5$	+ 1	$\perp$	nein	groß
	$\frac{1}{\sqrt{2}}(p_x - ip_y) S \uparrow$	$S_{so} = 1/2$ $L_{sh} = -1, S_{sh} = -1/2$	$B \Gamma_5$	- 1	$\perp$	nein	groß
	$\frac{1}{\sqrt{2}}(p_x + ip_y) S \uparrow$	$S_{so} = 1/2$ $L_{sh} = 1, S_{sh} = 1/2$	$B \Gamma_6$	+ 2	verboten	ja	klein
	$\frac{1}{\sqrt{2}}(p_x - ip_y) S \downarrow$	$S_{so} = -1/2$ $L_{sh} = -1, S_{sh} = -1/2$	$B \Gamma_6$	- 2	verboten	ja	klein
C	$p_x S \uparrow$	$S_{so} = +1/2$ $L_{sh} = 0, S_{sh} = 1/2$	$C \Gamma_5$	+ 1	$\perp$	ja	klein
	$p_x S \downarrow$	$S_{so} = 1/2$ $L_{sh} = 0, S_{sh} = -1/2$	$C \Gamma_5$	- 1	$\perp$	ja	klein
	$\frac{1}{\sqrt{2}}(p_x S \downarrow + p_y S \uparrow)$	$S_{so} = +1/2$ $L_{sh} = 0, S_{sh} = \pm 1/2$	$C \Gamma_3$	0	$\parallel$	nein	groß
	$\frac{1}{\sqrt{2}}(p_x S \downarrow - p_y S \uparrow)$	$S_{so} = 1/2$ $L_{sh} = 0, S_{sh} = \pm 1/2$	$C \Gamma_2$	0	verboten	nein	klein

Tab. 2.1 Exzitonzustände in ZnO (n=1) entnommen aus
R.Helbig Habil. /2.10/.

In Tabelle 2.1 (aus /2.10/) sind die wichtigsten Merkmale der Exzitonzustände in Wannier-Näherung zusammengestellt. Berücksichtigt wurde nur die Kristallfeld- und die Spin-Bahn-Wechselwirkung, deswegen sind die 4 Zustände eines Bandes entartet.

Die Dipolübergänge von A und B Exzitonen sind im wesentlichen $\perp$ c-orientiert und besitzen die Symmetrie Γ_5 . Ihre Eigenfrequenzen liegen so dicht zusammen ($\Delta E = 6 \text{ meV}$), daß sie eine gekoppelte Resonanzstelle bilden. Die Resonanzfrequenz des A-Exzitons liegt in einem Energiebereich, in dem die Hintergrunds-DK für das A-Exziton schon stark durch das B-Exziton gestört wird. Das A-Exziton trägt deshalb weniger zum Reflexionsvermögen bei.

Der Dipolübergang des C-Exzitons ist hauptsächlich $\parallel$ c orientiert mit der Symmetrie Γ_1 . Er ist energetisch weit genug von den Resonanzstellen des A, B-Exzitons entfernt ($\Delta E = 36 \text{ meV}$) und kann als isolierte Resonanzstelle behandelt werden.

2.2.1 Vielteilchenkorrektur

Die Elektron-Loch-Austauschwechselwirkung liefert die wichtigste Korrektur zu den Lösungen des Coulombproblems in Einteilchen-Näherungen.

Balslev und Skettrup /2.3/ haben für ZnO die Austauschwechselwirkung als zusätzliche Störung im Rahmen des quasikubischen Modells von Thomas und Hopfield /2.4/ eingebracht. K. Schumann /2.5/ berechnete auf dieser Grundlage das Kopplungsschema für Exzitonen in ZnO.

Die Austauschwechselwirkung hebt die Entartung der 4 Zustände eines Bandes auf, sie führt nur zwischen Singulett-Exzitonzuständen zu nicht verschwindenden Matrixelementen. Deren Wert hängt vom Winkel zwischen dem k-Vektor und den Dipolmomenten der beteiligten Zustände ab.

Liegt k in der isotropen (x,y)-Ebene, sind die Eigenzustände vollständig entkoppelt. Man erhält pro Band eine longitudinale und eine transversale Schwingung.

Liegt k in der (x,z) oder (y,z)-Ebene, sind longitudinal transversal gemischte Zustände möglich, die Polarisationsrichtungen sind nicht vollständig entkoppelt (siehe /2.5/, Tab. 4.15).

2.2.2 k-lineare Wechselwirkung

Bei Kristallen mit Wurtzit- oder Zinkblendstruktur fehlt das Inversionszentrum, die Bandenergien können Terme linear in $k_{\perp}$ enthalten. Sie führen zu einer Mischung von Triplett- und Singulettzuständen, die in der k·p-Störungsrechnung (G.Dresselhaus /2.6/) berücksichtigt sind.

Man erhält für die k-linearen Terme den Beitrag $H_{vv}(t)$ zum Hamiltonian (Hopfield und Thomas /2.4/, Pikus und Bir /2.7/)

$$H_{vv}(k) = \begin{pmatrix} 0 & D \\ D^+ & 0 \end{pmatrix} \quad 2.7$$

für das B-Exziton lautet die Kopplungsmatrix D

$$D^B = \beta_B \begin{pmatrix} k_x - k_y \\ -k_y - k_x \end{pmatrix}$$

β_B ist so klein, daß für das B-Exziton k-lineare Terme vernachlässigt werden können. Sie werden auch im Experiment nicht beobachtet (K.Schuhmann /2.5/, Kuhnert /2.8/).

Für das A- und C-Exziton ergibt sich

$$D^{A,C} = i \begin{pmatrix} \beta_1^{A,C} & k_x & -\beta_2 & k_y \\ \beta_1^{A,C} & k_y & \beta_2^{A,C} & k_x \end{pmatrix} \quad 2.8$$

Beim C-Exziton enthält nur der Anteil mit Γ_5 -Symmetrie Terme mit k, die Oszillatorstärke ist allerdings so gering, daß wir auch beim C-Exziton k-lineare Terme vernachlässigen können.

Nur beim A-Exziton kann folglich die k-lineare Wechselwirkung beobachtet werden. In quasikubischer Näherung gilt $\beta_1 \approx \beta_2$, so daß die Wechselwirkungsmatrix 2.8 des A-Exzitons vereinfacht werden kann.

$$D^A = i\beta_A \begin{pmatrix} -k_x & -k_y \\ -k_y & k_x \end{pmatrix} \quad 2.9$$

Außer der Aufhebung der Entartung der Zustände eines Bandes führt die k-lineare Wechselwirkung zu einer Mischung von verschiedenen Bändern mit Γ_1 Symmetrie. Sie ist so klein, daß sie in Reflexionsexperimenten nicht beobachtet werden kann und wird im folgenden stets vernachlässigt.

2.3 Exzitonische Polaritonen

Exzitonen, deren Dipolmatrizelemente für den Übergang vom Valenz- zum Leitungsband eine nichtverschwindende Komponente senkrecht zur Ausbreitungsrichtung haben, können mit elektromagnetischen Wellen im Festkörper wechselwirken. In der Sprache der Quantenmechanik entsteht ein gekoppeltes System aus Photonen und transversalen Exzitonen. Die Eigenzustände dieses Systems ergeben neue elementare Anregungen, die exzitonischen Polaritonen.

Für die Linienformanalyse von Reflexionsspektren verzichtet man auf die sehr aufwendige quantenmechanische Behandlung der Exzitonen-Photon-Wechselwirkung und beschränkt sich auf die Darstellung durch einen phänomenologischen Oszillatoransatz.

2.4 Dielektrische Funktion für exzitonische Polaritonen

Die dielektrische Funktion enthält die Antwort des Systems exzitonisches Polariton auf eine äußere Störung durch eine elektromagnetische Welle.

2.4.1 Die dielektrische Funktion einer isolierten Resonanzstelle

Der phänomenologische Ansatz für die dielektrische Funktion eines Mediums mit Exzitonen lautet (Hopfield, Thomas /2.4/)

$$\epsilon(\omega, k) = \epsilon_{\infty} \left(1 + \frac{\omega_L^2 - \omega_f^2}{\omega_f^2 - \omega^2 + \beta k^2 - i\omega\Gamma} \right) \quad 2.10$$

ϵ_{∞} ist die Hintergrunddielektrizitätskonstante, in der alle Beiträge zur DK der Resonanzstellen mit größerer Eigenfrequenz als der betrachteten zusammengefaßt sind; ω_T und ω_L sind die transversalen bzw. longitudinalen Eigenfrequenzen des Exzitons; ω ist die Frequenz des einfallenden Lichtes; in der phänomenologischen Dämpfung Γ sind alle Prozesse berücksichtigt, die zu einer endlichen Lebensdauer des Exzitons führen; der Term βk^2 beinhaltet die Schwerpunktsbewegung des Exzitons, er bewirkt die räumlich dispersiven Eigenschaften, β ist gegeben durch

$$\beta = (\hbar \omega_T) / M \quad 2.11$$

M ist die Gesamtmasse des Exzitons.

Die Kopplung von Exzitonen und Lichtwellen im Medium führt zu transversalen Polarisationswellen, den exzitonischen Polaritonen.

2.4.2 Dielektrische Funktion einer gekoppelten Resonanzstelle

In ZnO liegen die Eigenenergien des A und B Exzitons so eng zusammen, daß der Einfluß des B-Exzitons auf das resonante Verhalten des A-Exzitons nicht mehr allein in der konstanten Hintergrund-DK ϵ_{∞} berücksichtigt werden kann.

Die dielektrische Funktion für diesen Fall lautet (Lagois /2.9/):

$$\epsilon(\omega, k) = \epsilon_{\infty} \left(1 + \frac{\omega_{BL}^2 - \omega_{AT}^2}{\omega_{BT}^2 - \omega_{AT}^2} \frac{\omega_{AL}^2 - \omega_{AT}^2}{\omega_{AT}^2 - \omega^2 + \beta_A k^2 - i\omega\Gamma_A} + \frac{\omega_{AL}^2 - \omega_{BT}^2}{\omega_{AT}^2 - \omega_{BT}^2} \frac{\omega_{BL}^2 - \omega_{BT}^2}{\omega_{BT}^2 - \omega^2 + \beta_B k^2 - i\omega\Gamma_B} \right) \quad 2.12$$

wobei ω_{AL} , ω_{AT} , ω_{BL} , ω_{BT} die longitudinalen bzw. transversalen Eigenenergien von A und B-Exziton bedeuten; außerdem gilt $\beta_A = \hbar\omega_{AT}/M_A$ und $\beta_B = \hbar\omega_{BT}/M_B$

Um die optischen Eigenschaften eines uniaxialen Kristalls für alle Beobachtungsgeometrien richtig zu beschreiben, muß das Oszillatormodell aus Kapitel 2 mit den dielektrischen Tensor ϵ_{ij} und der Polarisation der einfallenden elektromagnetischen Welle verknüpft werden. Der dielektrische Tensor wird im folgenden Kapitel beschrieben, die Wechselwirkung mit Licht in Kapitel 4.

3. Dielektrische Tensor in uniaxialen Kristallen

3.1 Einleitung

Die charakteristische Größe für die Ausbreitung elektromagnetischen Wellen in einem Medium ist der komplexe dielektrische Tensor ϵ_{ij} . Er bestimmt dessen elektromagnetische und damit auch optische Eigenschaften.

Wir wollen die Ausbreitung ebener, monochromatischer Wellen in einem Medium betrachten, dessen elektrisches Feld gegeben ist durch

$$\underline{E} = \underline{E}_0 e^{i(\underline{k} \cdot \underline{r} - t)} \quad \underline{k} = \omega/c \, n(\omega, \underline{k}_0) \, \underline{k}_0 \quad 3.1$$

E_0 ist die komplexe elektrische Feldamplitude

$\underline{k}_0 = \underline{k}' / k'$ ist der Einheitsvektor in Ausbreitungsrichtung der Welle

n ist der komplexe Brechungsindex des Mediums, der noch von der Polarisation der Welle abhängen kann.

Im Rahmen der linearen Elektrodynamik verknüpft der dielektrische Tensor die elektrische Feldstärke $\underline{E}$ mit der dielektrischen Verschiebung $\underline{D}$

$$D_i = \epsilon_{ij} E_j \quad 3.2$$

Ist das betrachtete Medium polarisierbar, muß die Frequenzabhängigkeit von ϵ berücksichtigt werden. Die Polarisation $\underline{P}$ eines Mediums ist definiert durch

$$\underline{D} = \underline{E} + 4\pi \underline{P} \quad \underline{P} = \frac{\epsilon - 1}{4\pi} \underline{E} \quad 3.3$$

Liegt die Frequenz des elektromagnetischen Feldes im Bereich der Eigenfrequenz der Polarisation des Mediums oder darüber, kann die Polarisation dem elektrischen Feld nicht sofort folgen, ihr Wert zur Zeit t wird von der Größe des elektrischen Feldes der Zeiten t' zuvor abhängen (s. z.B./3.1/)

$$\underline{P} = \int_{-\infty}^t \frac{\epsilon(t') - 1}{4\pi} \underline{E}_0 e^{i(\underline{k} \cdot \underline{r} - \omega t')} dt' \quad 3.4$$

Der Kausalität wegen muß gelten $t - t' > 0$

wir erhalten dann

$$\underline{P} = \frac{\epsilon(\omega) - 1}{4\pi} \underline{E} \quad 3.5$$

mit

$$\epsilon(\omega) = \int_{-\infty}^t \epsilon(t') e^{-i\omega t'} dt' \quad 3.6$$

und

$$D_i(\omega) = \epsilon_{ij}(\omega) E_j(\omega) \quad 3.7$$

Die Beziehung 3.7 ist die Materialgleichung der klassischen Kristalloptik.

Wird die Polarisierbarkeit eines Mediums durch Exzitonen verursacht, muß zusätzlich zur Frequenzdispersion $\epsilon_{ij} = \epsilon_{ij}(\omega)$ eine räumliche Dispersion $\epsilon_{ij}(\omega, \underline{k})$ eingeführt werden. Die Verknüpfung der dielektrischen Funktion mit den Eigenschaften exzitonischer Polaritonen wurde in Kapitel 2.4 hergestellt. Eine ausführliche Darstellung befindet sich in /3.2/.

Damit lautet die Materialgleichung

$$D_i(\omega, \underline{k}) = \epsilon_{ij}(\omega, \underline{k}) E_j(\omega, \underline{k}) \quad 3.8$$

bzw

$$D_i(\underline{r}, t) = \iiint_{-\infty}^{\infty} \epsilon_{ij}(\omega, \underline{k}) E_j(\omega, \underline{k}) d\omega d\underline{k} \quad 3.9$$

Der Wert der dielektrischen Verschiebung $\underline{D}$ am Ort $\underline{r}$ zur Zeit t ist damit gegeben aus den Beiträgen aller Frequenzen ω aus jedem Punkt des unendlichen $\underline{k}$ -Raumes. ~~Dem~~ bei der Herleitung der dielektrischen Funktion wurde von der Translationsinvarianz des Gitters Gebrauch gemacht. Optische Experimente verlangen jedoch eine Grenzfläche, die Beiträge zur dielektrischen Verschiebung in 3.9 kommen nur aus dem Halbraum. Die im optischen Experiment benötigte Halbraumgeometrie ist aber unvereinbar mit der Forderung nach Translationsinvarianz des Gitters für die dielektrische Funktion.

Zur Beschreibung eines realen optischen Experimentes gibt es in der Literatur zwei Wege:

der ältere Ansatz von Pekar /3.3/ und Thomas Hopfield /3.4/ umgeht den Widerspruch zwischen Halbraumgeometrie und Translationsinvarianz durch die Einführung einer exzitonenfreien Randschicht. Dafür müssen zusätzliche Randbedingungen (Additional Boundary Conditions, ABC) eingeführt werden, um die Reflexion an der Grenzfläche exzitonenfreie Randschicht-Kristallvolumen zu beschreiben.

Einen neuen Weg beschritt A. Stahl /3.5/, indem er von der ortsabhängigen dielektrischen Funktion $\epsilon(\omega, \underline{r})$ und der Halbraumgeometrie ausgeht. Voraussetzung dafür ist die Lösung der Schrödinger-Gleichung des Exzitons im

Ortsraum, die nur in adiabatischer Näherung möglich ist.

In den folgenden Abschnitten soll der Zusammenhang zwischen Kristallstruktur, Polaritonmodell und dielektrischem Tensor mit räumlicher und zeitlicher Dispersion hergestellt werden.

3.2 Der dielektrische Tensor $\epsilon_{ij}(\omega)$

Der dielektrische Tensor $\epsilon_{ij}(\omega)$ mit zeitlicher (Frequenz-) Dispersion ist für nichtmagnetische Substanzen ($\mu=1$) symmetrisch $\epsilon_{ij}(\omega) = \epsilon_{ji}(\omega)$. Seine neun Komponenten reduzieren sich auf sechs /3.6/. Auf Hauptachsenform gebracht enthält er drei unabhängige Komponenten. Für uniaxiale Kristalle sind zwei der drei Diagonalelemente gleich, so daß $\epsilon_{ij}(\omega)$ zwei unabhängige Komponenten enthält.

Die dielektrischen Hauptachsen bilden für die Kristallklassen des trigonalen, tetragonalen und hexagonalen Systems ein kartesisches Koordinatensystem. Eine der dielektrischen Hauptachsen fällt mit der ausgezeichneten Achse des Kristallsystems zusammen. Diese Kristallsysteme zeigen keine Achsendispersion; die Orientierung der Hauptachsen des dielektrischen Tensors ist damit unabhängig von der Frequenz.

Der dielektrische Tensor mit zeitlicher Dispersion lautet damit in Hauptachsenform

$$\epsilon(\omega) = \begin{pmatrix} \epsilon_{\perp}(\omega) & 0 & 0 \\ 0 & \epsilon_{\perp}(\omega) & 0 \\ 0 & 0 & \epsilon_{\parallel}(\omega) \end{pmatrix} \quad 3.10$$

Die Indices $\perp$ und $\parallel$ beziehen sich auf die ausgezeichnete Kristallachse.

Die Frequenzabhängigkeit der Komponenten des dielektrischen Tensors ist in unserem Fall durch die Resonanzen der exzitonischen Polaritonen bestimmt. Nur dort, wo die Dipolauswahlregeln einen exzitonischen Übergang erlauben, enthalten die Komponenten des dielektrischen Tensors frequenzabhängige Anteile:

parallel zur c-Achse durch die Übergänge $\Gamma_1(C)$, $\Gamma_1(A)$
senkrecht zur c-Achse durch die Übergänge $\Gamma_5(A)$, $\Gamma_5(B)$, $\Gamma_5(C)$

außerhalb der exzitonischen Resonanzstellen ist der dielektrische Tensor durch die frequenzunabhängigen dielektrischen Konstanten des nichtresonanten Hintergrundes bestimmt

$$\epsilon_{ij} = \begin{cases} \epsilon_{ij,\infty} & \text{oberhalb der exzitonischen Resonanzstelle} \\ \epsilon_{ij,0} & \text{unterhalb der exzitonischen Resonanzstelle} \end{cases}$$

3.3 Der dielektrische Tensor $\epsilon(\omega, \underline{k})$

Im Abschnitt 2.4 wurde aus einem semiklassischen Oszillatormodell die dielektrische Funktion $\epsilon(\omega, \underline{k})$ eines Mediums mit exzitonischer Resonanz hergeleitet. Der räumlich dispersive Anteil $(\hbar\omega_T/M)k^2$ resultiert aus der endlichen Exzitonenmasse M.

Der Einfluß der räumlichen Dispersion auf den dielektrischen Tensor ist klein, es gilt das für die Dispersion charakteristische Verhältnis

$$\frac{na_0}{\lambda} = \frac{a_0 kn}{2\pi} < 1$$

a_0 Exzitonenradius

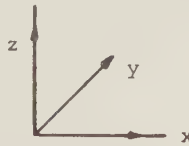
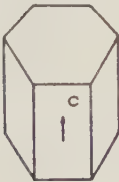
n Brechungsindex des Mediums

k Wellenvektor des elektrischen Feldes

Um den Einfluß von zeitlicher und räumlicher Dispersion in $\epsilon(\omega, \underline{k})$ zu trennen, entwickeln wir den dielektrischen Tensor nach Potenzen von k um $k=0$ und erhalten

$$\epsilon_{ij}(\omega, \underline{k}) = \epsilon_{ij}(\omega) + i \sum_e \gamma_{ij,e} k_e + \sum_{e,m} \alpha_{ij,em} k_e k_m + \quad 3.11$$

wir verwenden im folgenden das Koordinatensystem



In Kristallklassen mit Inversionssymmetrie verschwinden alle ungeraden Potenzen von k . ZnO gehört der Punktgruppe 6 mm an, die kein Inversionszentrum besitzt.

Wie schon bei der Diskussion der Exzitonenbandstruktur im Abschnitt 2.2 vernachlässigen wir auch hier den Einfluß der k -linearen Terme und berücksichtigen sie später in Form einer Störungsrechnung.

Wir nehmen an, daß der Tensor ohne räumliche Dispersion $\epsilon(\omega)$ in Hauptachsenform vorliegt und k -lineare Terme sowie Terme höherer Ordnung als quadratisch in k in 3.11 verschwinden. Jetzt hängt die Symmetrie von $\epsilon(\omega, \underline{k})$ nur noch von der Symmetrie des Tensors α_{ijlm} ab.

Wie Hümmer /3.2/ gezeigt hat, besitzt α die Symmetrie des elastooptischen Tensors, seine Entwicklungskoeffizienten haben für die Klasse 6mm in verkürzter Schreibweise die Darstellung (s. Nye /3.7/)

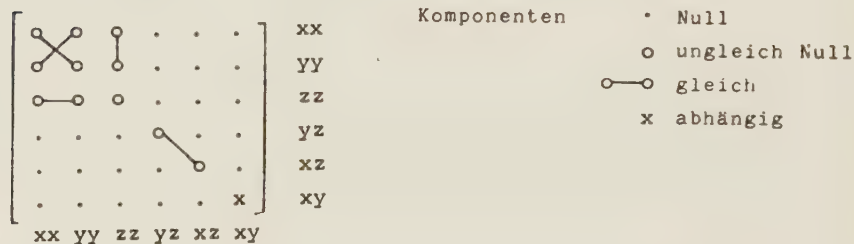


Abb. 3.1 Komponenten des Tensors α für die Kristallklasse 6mm

Als Konsequenz ergibt sich für $\epsilon(\omega, \underline{k})$ eine räumliche Dispersion der Hauptachsen im Betrag für $\underline{k}$ in der isotropen (x,y)-Ebene und in Betrag und Richtung für alle anderen Richtungen.

Vernachlässigen wir wie im Abschnitt 2.4 die Vielteilchenkorrektur, die in der (x,z)- und (y,z)-Ebene die transversalen und longitudinalen Exzitonzustände mischt, verschwindet die Richtungsdispersion der Achsen für alle Richtungen von $\underline{k}$.

Aus der Entwicklung von $\epsilon(\omega, \underline{k})$ ergibt sich damit

$$\epsilon_{ij}(\omega, \underline{k}) = \epsilon_{ij}(\omega) + \sum_{\ell, m} \alpha_{ij\ell m} k_{\ell} k_m \quad 3.12$$

für die im Experiment verwendeten Geometrien erhalten wir zusammen mit dem halbquantenmechanischen Oszillatormodell für die Exzitonen in ZnO des Abschnitts 2.4 folgende Ausdrücke für den dielektrischen Tensor:

a) $\underline{k} \perp c$, $\underline{k} = (k_x, k_y, 0)$

$$\epsilon(\omega, \underline{k}) = \begin{pmatrix} \epsilon_1(\omega) + \alpha_1 & \alpha_3 & 0 \\ \alpha_3 & \epsilon_1(\omega) + \alpha_2 & 0 \\ 0 & 0 & \epsilon_1(\omega) + \alpha_4 \end{pmatrix} \quad 3.13$$

$$\text{mit } \alpha_1 = \sum_{\ell=x,y} \alpha_{\ell\ell\ell\ell} k_\ell^2 \quad \alpha_3 = 2 \alpha_{xyxy} k_x k_y$$

$$\alpha_2 = \sum_{\ell=x,y} \alpha_{\ell\ell\gamma\gamma} k_\ell^2 \quad \alpha_4 = \sum_{\ell=x,y} \alpha_{z\ell\ell\ell} k_\ell^2$$

die Austauschwechselwirkung führt zu einer vollständigen Polarisierung der Exzitonen in x- und y-Richtung, deshalb verschwindet für ZnO der Term α_3 ; vernachlässigen wir den Übergang $\Gamma_1(A)$ mit kleiner Oszillatorstärke ($\alpha_4=0$), erhalten wir

$$\epsilon(\omega, \underline{k}) = \begin{pmatrix} \epsilon_1(\omega) + \alpha_1 & 0 & 0 \\ 0 & \epsilon_1(\omega) + \alpha_2 & 0 \\ 0 & 0 & \epsilon_{4,\infty} \end{pmatrix} \quad 3.14$$

b) $\underline{k} \perp x$, $\underline{k} = (0, k_y, k_z)$

$$\epsilon(\omega, \underline{k}) = \begin{pmatrix} \epsilon_1(\omega) + \alpha_5 & 0 & 0 \\ 0 & \epsilon_1(\omega) + \alpha_6 & 0 \\ 0 & 0 & \epsilon_1(\omega) + \alpha_7 \end{pmatrix} \quad 3.15$$

$$\text{mit } \alpha_5 = \sum_{\ell=y,z} \alpha_{x\ell\ell\ell} k_\ell^2 \quad \alpha_6 = \sum_{\ell=y,z} \alpha_{\ell\ell\ell\ell} k_\ell^2$$

$$\alpha_7 = \sum_{\ell=y,z} \alpha_{\gamma\ell\ell\ell} k_\ell^2$$

3.4 Mögliche Ausbreitungsmoden von Polaritonen

Wir wenden uns nun der Frage zu, welche propagierenden Moden sich in einem Medium ausbreiten können, dessen dielektrische Eigenschaften durch einen Tensor mit der Symmetrie 3.12 und der räumlichen und zeitlichen Dispersion aus dem Oszillatormodell 2.10 bzw. 2.12 bestimmt sind.

Die Polarisationswellen, die im Medium mit dem dielektrischen Tensor $\epsilon_{ij}(\omega, \underline{k})$ durch ein elektrisches Feld $\underline{E} = \underline{E}_0 e^{i(\underline{k} \cdot \underline{r} - \omega t)}$ angeregt werden können, sind Lösungen der Dispersionsgleichung

$$\underline{k} \times \underline{k} \times \underline{E} + \omega^2/c^2 \epsilon_{ij}(\omega, \underline{k}) \underline{E} = 0 \quad 3.16$$

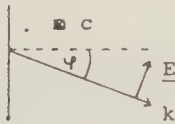
Im Experiment wurden der Größe und Qualität wegen nur natürlich gewachsene $10\bar{1}0$ -Flächen untersucht; wir können deshalb auf die allgemeine Lösung der Tensorgleichung 3.16 verzichten und beschränkten uns auf die Lösung der Spezialfälle

- 3.3.1 der Wellenvektor $\underline{k}$ des elektrischen Feldes ist senkrecht zur c-Achse orientiert, der Kristall ist isotrop bezüglich $\underline{k}$
 richtungsunabhängiger Fall
- 3.3.2 der Wellenvektor $\underline{k}$ liegt in der (y,z)-Ebene der Kristall ist anisotrop bezüglich $\underline{k}$
 richtungsabhängiger Fall

In der Näherung des Abschnitts 2.4 kann in ZnO das C-Exziton nur durch einen elektrischen Feldvektor parallel zur c-Achse angeregt werden, das A,B-Exziton nur durch einen elektrischen Feldvektor senkrecht zur c-Achse. Wir unterscheiden deshalb im folgenden zwischen den Polarisationsrichtungen des elektrischen Feldes senkrecht und parallel zur Einfallsebene.

3.4.1 Richtungsunabhängiger Fall

a) p-Polarisation



$$\underline{E} = (E_x, E_y, 0)$$

$$\underline{k} = (k_x, k_y, 0)$$

in dieser Geometrie ist nur das A,B-Exziton anregbar
die elektrische Feldstärke liegt in der Einfallsebene
der Kristall ist bezüglich $\underline{k}$ isotrop
es breiten sich 3 rein transversale Wellen aus
3.16 geht über in

$$\epsilon_{xx} = \epsilon_{yy} = \epsilon_{\perp} = c^2 k^2 / \omega^2 \quad 3.17$$

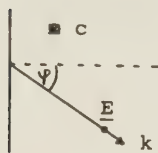
und zwei rein longitudinale Wellen mit

$$\epsilon_{\perp} = 0$$

$$\epsilon_{\parallel}(\omega, k) = \epsilon_{\parallel} = \left(1 + \frac{\omega_{BL}^2 - \omega_{AT}^2}{\omega_{BT}^2 - \omega_{AT}^2} \frac{\omega_{AL}^2 - \omega_{AT}^2}{\omega_{AT}^2 - \omega^2 + \beta_A k^2 - i\omega\Gamma_A} + \frac{\omega_{AL}^2 - \omega_{BT}^2}{\omega_{AT}^2 - \omega_{BT}^2} \frac{\omega_{BL}^2 - \omega_{BT}^2}{\omega_{BT}^2 - \omega^2 + \beta_B k^2 - i\omega\Gamma_B} \right) \quad 3.18$$

Die räumliche Dispersion wird durch die Eigenfrequenzen ω_{AT} und ω_{BT} sowie die Exzitonenmasse M bestimmt. Sie ist vom Einfallswinkel unabhängig.

b) s-Polarisation



$$\underline{E} = (0, 0, E_z)$$

$$\underline{k} = (k_x, k_y, 0)$$

in dieser Geometrie ist nur das C-Exziton anregbar, die elektrische Feldstärke steht immer senkrecht zur Ausbreitungsrichtung, es existieren nur rein transversale Wellen, 3.16 geht über in

$$\epsilon_{||} = c^2 k^2 / \omega^2 \quad 3.19$$

$$\epsilon_{\perp} = \epsilon_{\perp,0}$$

mit

$$\epsilon(\omega, \underline{k}) = \epsilon_{\infty} \left[1 + \frac{\omega_L^2 - \omega_T^2}{\omega_T^2 - \omega^2 + \beta k^2 - i\omega\Gamma} \right]$$

wobei mit ϕ der Winkel bezeichnet ist, den der Wellenvektor des Polaritonmodes mit dem Einfallslot einschliesst.

Für ZnO ist der Unterschied zwischen $M_{\perp}$ und $M_{\parallel}$ sehr klein, so daß wir ihn vernachlässigen können

C-Exziton	$M_{\parallel} = 0.59$	A,B-Exziton	$M_{\parallel} = 0.87$
	$M_{\perp} = 0.79$		$M_{\perp} = 0.81$

In der Sprache der Kristalloptik liegt der Fall der außerordentlichen Wellenausbreitung vor, die Dispersionsgleichung 3.16 lautet:

$$\epsilon_{yy} \epsilon_{zz} = \epsilon^2 k^2 / \omega^2 (\epsilon_{yy} \sin^2 \alpha + \epsilon_{zz} \cos^2 \alpha) \quad 3.22$$

die Beiträge aus y- und z-Richtung lassen sich nicht separieren, die entstehenden Polarisationswellen sind longitudinal-transversal gemischt (mixed-mode-Polaritonen).

Für senkrechte Inzidenz $\alpha = 0^\circ$ verschwinden die Beiträge des A,B-Exzitons und wir erhalten rein transversale Schwingungen des C-Exzitons.

Für streifende Inzidenz $\alpha = 90^\circ$ verschwindet der Beitrag des C-Exzitons, es entstehen rein transversale Polarisationswellen des A,B-Exzitons.

Die Resonanzstellen von A,B und C-Exziton sind energetisch soweit voneinander entfernt ($\Delta E = 38 \text{ meV}$), daß der Beitrag des nichtresonanten Exzitons in Form der frequenzunabhängigen Hintergrunds-DK $\epsilon_{\infty, \perp}$ bzw. $\epsilon_{0, \parallel}$ berücksichtigt werden kann.

Die mixed-mode-Polaritonen weisen eine weitere Besonderheit auf: sowohl die Oszillatorstärke als auch die Eigenfrequenz zeigen Richtungsdispersion /3.8, 3.9/.

Für die Oszillatorstärke $f = \epsilon_{\infty} (\omega_L^2 - \omega_T^2)$ gilt:

$$f(\phi) = f \cos^2 \phi \quad 3.23$$

d.h. mit zunehmendem Einfallswinkel nimmt die Oszillatorstärke ab.

Die Eigenfrequenz ω_R des mixed-mode-Polaritons ist

$$\omega_R^2 = \omega_T^2 + (\omega_L^2 - \omega_T^2) \sin^2 \phi \quad 3.24$$

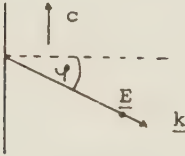
für $\phi = 0$ stimmt sie mit der transversalen Eigenfrequenz überein, mit wachendem Winkel ϕ verschiebt sie sich in Richtung der longitudinalen Eigenfrequenz, wobei die Oszillatorstärke des Übergangs abnimmt.

Wir erhalten mit Berücksichtigung der Richtungsdispersion folgende Komponenten des dielektrischen Tensors:

$$\epsilon_{YY} = \epsilon_{\infty} \left[1 + \frac{\omega_{BL}^2 - \omega_{BT}^2}{\omega_{BT}^2 - \omega_{AT}^2} \frac{(\omega_{AL}^2 - \omega_{AT}^2) \cos^2 \phi}{\omega_{AR}^2 + \hbar \omega_{AR} k^2 / M(\phi) - i \omega \Gamma_A - \omega^2} + \frac{\omega_{AL}^2 - \omega_{BT}^2}{\omega_{AT}^2 - \omega_{BT}^2} \frac{(\omega_{BL}^2 - \omega_{BT}^2) \cos^2 \phi}{\omega_{BR}^2 + \hbar \omega_{BR} k^2 / M(\phi) - i \omega \Gamma_B - \omega^2} \right] \quad 3.25$$

$$\epsilon_{ZZ} = \epsilon_{\infty} \left[1 + \frac{(\omega_{CL}^2 - \omega_{CT}^2) \cos^2 \phi}{\omega_{CR}^2 + \hbar \omega_{CR} k^2 / M(\phi) - i \omega \Gamma_C - \omega^2} \right] \quad 3.26$$

b) s-Polarisation



$$\underline{E} = (E_x, 0, 0)$$

$$\underline{k} = (0, k_y, k_z)$$

diese Anordnung entspricht dem ordentlichen Fall der Kristalloptik; in dieser Geometrie wird nur das A,B-Exziton angeregt, es entstehen nur transversale Polarisationswellen. Vernachlässigen wir die Winkeldispersion der Exzitonmassen, stimmt $\epsilon_{\perp}$ mit 3.18 dem richtungsunabhängigen Fall überein.

4. Reflexion exzitonischer Polaritonen

4.1 Einleitung

Problem der zusätzlichen Randbedingungen

Die Existenz einer Kristalloberfläche in optischen Experimenten erfordert eine dielektrische Funktion, die die gebrochene Translationssymmetrie berücksichtigt. Der in Kapitel 3 hergeleitete Tensor $\epsilon_{ij}(\omega, \mathbf{k})$ trägt den veränderten exzitonischen Eigenschaften im Bereich der Oberfläche nicht Rechnung.

Die einfachste Näherung für eine reale Oberfläche stellt das Modell der exzitonenfreien Randschicht von Hopfield und Thomas /4.1/ dar. Sie fordern eine intrinsische exzitonenfreie Randschicht, da sich ein Exziton wegen der induzierten Bildladung der Oberfläche nicht weiter als etwa zwei Exzitonenradien nähern kann. Die stets vorhandene intrinsische Randschicht kann durch extrinsische Einflüsse wie elektrische Felder an der Oberfläche vergrößert werden.

Die dielektrische Funktion im Modell der exzitonenfreien Randschicht ist eine Stufenfunktion. Im Bereich der Randschicht nimmt sie den Wert der nicht resonanten Hintergrunds-DK ϵ_{∞} an, im Volumen wird sie der der translationsinvarianten Funktion $\epsilon(\omega, \mathbf{k})$ gleichgesetzt.

Die gebrochene Translationssymmetrie wird weiterhin ignoriert. Dies führt zum Problem der zusätzlichen Randbedingungen: eine auf die Grenzfläche einfallende Welle kann im Kristall mehr als eine Polarisationswelle erzeugen; ihre Amplituden sind aus den Maxwellgleichungen allein nicht mehr eindeutig bestimmbar. Für jede weitere Polarisationswelle ist eine zusätzliche Randbedingung nötig (ABC -additional boundary condition), die mit dem mikroskopischen Verhalten der Exzitonen an der Oberfläche /4.7/, /4.8/ korreliert sein sollte. Theoretische Ansätze /4.2/, /4.6/ führten zu einer Vielzahl von Randbedingungen, der Vergleich mit den Experimenten favorisiert keine von ihnen. Im folgenden sind deshalb die Pekar-Hopfield- Randbedingungen verwendet, die das Verschwinden der exzitonischen Polarisation an der Randschicht fordern.

$$\underline{P}_{\text{ex}} \Big|_{z=d} = 0 \quad 4.1$$

Die Probleme mit zusätzlichen Randbedingungen und exzitonenerfreier Randschicht lassen sich nur vermeiden, wenn man die dielektrische Funktion für den Halbraum unter Verzicht auf die Translationssymmetrie definiert und damit die Maxwell-Gleichungen löst. Stahl und Mitarbeiter haben auf dieser Grundlage ein Polaritonenkonzept entwickelt, das frei von den obengenannten Schwierigkeiten ist /4.11/.

4.2 Berechnung der Reflexionskoeffizienten r_{ij} Drei-Schichtmodell

Der Tensor des Reflexionsvermögens r_{ij} beschreibt die Transformation des elektrischen Feldes $\underline{E}^1$ der einlaufenden Lichtwelle in das elektrische Feld $\underline{E}^r$ der reflektierten Welle

$$E_j^r = r_{ij}^* E_i^i \quad 4.2$$

Die Komponenten des Reflexionstensors sind im allgemeinen komplex, ihr Real- und Imaginärteil wird im Experiment getrennt bestimmt

$$r_{ij}^* = r_{ij} e^{i\Delta_{ij}} \quad 4.3$$

ihr Wert hängt ab vom Einfallswinkel α der Lichtwelle, den Randbedingungen an der Grenzfläche und den dielektrischen Eigenschaften der reflektierenden Substanz; aus dem Polaritonenmodell gehen ein: die Zahl und Brechungsindices der angeregten Polarisationswellen im Medium, die exzitonischen Parameter $\omega_L, \omega_T, M, \Gamma$, die zusätzlichen Randbedingungen (ABC), sowie die Dicke d und der Brechungsindex n_s der exzitonenfreien Randschicht

$$r_{ij} = r_{ij}(\alpha, \epsilon_{ij}(\omega, \underline{k}), ABC, d, n_s) \quad 4.4$$

Die Beziehung zwischen r_{ij} und ϵ_{ij} ist nicht geschlossen darstellbar..

Die Abhängigkeit der r_{ij} von den Parametern in 4.4 kann ebenfalls nicht mehr analytisch angegeben werden.

Wir müssen uns auf ein mehrstufiges Verfahren zur Bestimmung der Reflexionskoeffizienten beschränken. Trotzdem sind weitere Einschränkungen nötig:

- im folgenden soll (wie im Kapitel 3) von k-linearen Termen der Exzitonenbandstruktur abgesehen werden
- die Beiträge der räumlichen Dispersion $\hbar\omega_T k^2/M$ werden als so klein angenommen, daß die Hauptachsen des dielektrischen Tensors keine Richtungsdispersion aufweisen.

damit entfallen alle Nichtdiagonalelemente von $\epsilon_{ij}(\omega, \underline{k})$; die exzitonenischen Polaritonen entsprechen den Normalmoden des Kristalls; die Hauptachsen des Tensors r_{ij}^* stimmen mit denen des dielektrischen Tensors überein und r_{ij}^* enthält nur Diagonalelemente.

$$r_{ij}^* = \begin{bmatrix} r_{xx} e^{i\Delta \cdot x} & 0 & 0 \\ 0 & r_{yy} e^{i\Delta \cdot y} & 0 \\ 0 & 0 & r_{zz} e^{i\Delta \cdot z} \end{bmatrix} \quad 4.5$$

Bei der Berechnung der Reflexionskoeffizienten r_{ij} ist die Reflexion an der Grenzfläche Luft-exzitonenfreie Randschicht und an der Grenzfläche exzitonenfreie Randschicht Kristallvolumen, sowie die Vielfach-Reflexion zu berücksichtigen.

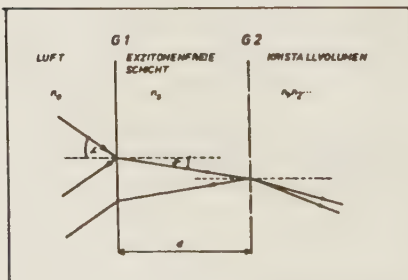


Abb. 4.1
Reflexion an einem Medium
mit Exzitonen und einer
exzitonenfreien Randschicht

Zur Lösung der Fresnel-Gleichungen führen wir ein Dreischichten-Modell ein und berechnen die Reflexionskoeffizienten in drei Schritten:

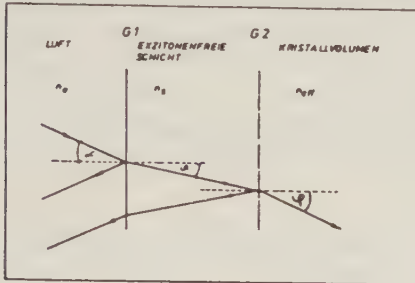


Abb. 4.2
Reflexion im Dreischichtenmodell mit effektivem Brechungsindex

- 1) aus den Dispersionsrelationen der entsprechenden experimentellen Geometrie werden die Zahl der beteiligten Polaritonäste und deren Brechungsindices n_i bestimmt
- 2) ein effektiver Brechungsindex $n_{\text{eff},s}$, $n_{\text{eff},p}$ wird für senkrecht und parallel zur Einfallsebene polarisiertes Licht gebildet, die Beiträge der einzelnen Polaritonäste zum effektiven Brechungsindex werden aus Maxwell-Randbedingungen und den zusätzlichen Randbedingungen berechnet, die genaue Struktur des effektiven Brechungsindex wird in Abschnitt 4.3 diskutiert
- 3) die exzitonenfreie Randschicht und die Vielfachreflexion werden im Ausdruck für das Reflexionsvermögen (4.14) von H. Wolter /4.9/ berücksichtigt.

Der effektive Brechungsindex dient ausschließlich einer kompakteren Darstellung der Reflexionsgleichungen. Er hat keinerlei Aussagekraft für die Interpretation anderer optischer Experimente.

4.3 Berechnung der Reflexionskoeffizienten Isolierte Resonanzstelle

Bei der Berechnung der Reflexionskoeffizienten der Resonanz des C-Exzitons sind je nach Orientierung der Einfallsebene der Lichtwelle und der reflektierenden Kristallfläche drei Fälle zu unterscheiden:

- a) die reflektierende Kristallfläche ist eine $(10\bar{1}0)$ -Fläche
die Einfallsebene ist senkrecht zur c-Achse orientiert
 $\underline{k} = (k_x, k_y, 0)$ $\underline{E} = (0, 0, E_z)$
er entspricht dem Fall der richtungsunabhängigen Wellenausbreitung der Kristalloptik und wird in Abschnitt 4.3.1 diskutiert.
- b) die reflektierende Kristallfläche ist eine $(10\bar{1}0)$ -Fläche
die Einfallsebene ist parallel zur c-Achse orientiert
 $\underline{k} = (0, k_y, k_z)$ $\underline{E} = (E_x, 0, 0)$ oder $\underline{E} = (0, E_y, E_z)$
er entspricht der richtungsabhängigen Wellenausbreitung in der Kristalloptik und wird in Abschnitt 4.3.2 dargestellt.
- c) die reflektierende Kristallfläche ist eine (0001) -Fläche,
die Einfallsebene enthält die c-Achse
dieser quasikubische Fall wurde experimentell nicht untersucht und wird nur der Vollständigkeit halber angegeben.

4.3.1 Richtungsunabhängiger Fall

Im richtungsunabhängigen Fall ist die dielektrische Funktion des Kristalls vom Einfallswinkel α unabhängig. Der Kristall ist isotrop bezüglich der Einfallsebene des Lichtes.

Der dielektrische Tensor lautet in der Näherung des Abschnitts 4.2:

$$\epsilon(\omega, \underline{k}) = \begin{pmatrix} \epsilon_{\perp,0} & 0 & 0 \\ 0 & \epsilon_{\perp,0} & 0 \\ 0 & 0 & \epsilon_{\parallel}(\omega, \underline{k}) \end{pmatrix} \quad 4.6$$

$$\epsilon(\omega, \underline{k}) = \epsilon_{\infty} \left[1 + \frac{\omega_L^2 - \omega_T^2}{\omega_T^2 - \omega^2 + \beta k^2 - i\omega\Gamma} \right]$$

die Berechnung des Reflexionskoeffizienten erfolgt getrennt für die Polarisierung der einlaufenden Welle senkrecht und parallel zur Einfallsebene.

a) Senkrechte Polarisierung

Die nachstehende Zeichnung erläutert die experimentelle Geometrie und die verwendeten Bezeichnungen

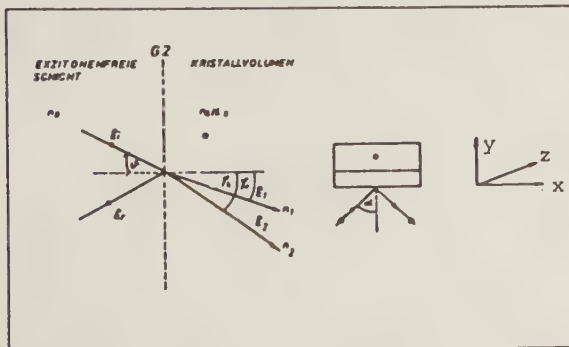


Abb. 4.3

Reflexion im Dreischichtmodell
richtungsunabhängiger Fall
s-Polarisation

Im Kristall werden zwei rein transversale Polarisationswellen erzeugt. Die dielektrische Funktion 4.6 eingesetzt in die Dispersionsgleichung

$$\epsilon_{11}(\omega, \underline{k}) = c^2 k^2 / \omega^2 \quad 4.7$$

ergibt die Brechungsindices der beteiligten Polarisationswellen

$$n_{1,2}^2 = \frac{1}{2} \left[\epsilon_{\infty} - \frac{\omega_T^2 - \omega^2 - i\omega\Gamma}{\hbar \omega_T k^2 / M} \pm \sqrt{\epsilon_{\infty}^2 + \frac{\omega_T^2 - \omega^2 - i\omega\Gamma}{\hbar \omega_T k^2 / M} + 4\epsilon_{\infty} \frac{\omega_L^2 - \omega_T^2}{\hbar \omega_T k^2 / M}} \right] \quad 4.8$$

als nächstes wird der effektive Brechungsindex in Verbindung mit den zusätzlichen Randbedingungen berechnet.

An der Grenzfläche G2 exzitonenfreier Randschicht-Kristallvolumen müssen die Maxwell-Randbedingungen, Stetigkeit der Tangentialkomponente der elektrischen und magnetischen Feldstärke erfüllt sein.

Die Maxwell-Randbedingungen für s-Polarisation lauten:

$$E_i + E_r = E_1 + E_2 \quad 4.9 \quad (1)$$

$$(E_i - E_r) n_s \cos \vartheta = E_1 n_1 \cos \varphi_1 + E_2 n_2 \cos \varphi_2 \quad (2)$$

für die zusätzliche Polarisationswelle ist eine zusätzliche Randbedingung nötig; in der Formulierung von Hopfield müssen die Beiträge P_i der einzelnen Polarisationswellen zur Gesamtpolarisation P verschwinden

$$P_1 + P_2 = 0$$

$$\text{oder} \quad n_1^2 E_1 + n_2^2 E_2 = 0 \quad (3)$$

dabei ist P_i der Beitrag des i -ten Polarisationsastes mit der dielektrischen Funktion

$$\epsilon_i = \epsilon_\infty \left(1 + \frac{\omega_L^2 - \omega_T^2}{\omega_T^2 - \omega^2 + i\omega_T \omega^2 / (Mc^2) \epsilon_i - i\omega\Gamma} \right) \quad 4.10$$

Die Auflösung des Gleichungssystems 4.9 (1-3) nach der Amplitude der reflektierten Welle liefert den Reflexionskoeffizienten r_s für die Grenzfläche G 2

$$r_s = n_s \cos \alpha \frac{n_2^2/n_1^2 \sqrt{n_1^2 - n_s^2 \sin^2 \alpha} - \sqrt{n_2^2 - n_s^2 \sin^2 \alpha}}{\sqrt{n_1^2 - n_s^2 \sin^2 \alpha} - n_1^2/n_2^2 \sqrt{n_2^2 - n_s^2 \sin^2 \alpha} + n_s \cos \alpha} \quad 4.11$$

den effektiven Brechungsindex erhalten wir aus der Fresnel-Formel für senkrechte Polarisation

$$r_s = - \frac{n_{\text{eff},s} - n_s}{n_{\text{eff},s} + n_s} \quad 4.12$$

er lautet

$$n_{\text{eff},s} = -n_s \frac{\sqrt{n_1^2 - n_s^2 \sin^2 \alpha} (n_s n_2^2 / n_1^2 \cos \alpha - 1) - \sqrt{n_2^2 - n_s^2 \sin^2 \alpha} (n_s \cos \alpha + n_1^2 / n_2^2) - n_s \cos \alpha}{\sqrt{n_1^2 - n_s^2 \sin^2 \alpha} (n_s n_2^2 / n_1^2 \cos \alpha + 1) - \sqrt{n_2^2 - n_s^2 \sin^2 \alpha} (n_s \cos \alpha - n_1^2 / n_2^2) + n_s \cos \alpha} \quad 4.13$$

berücksichtigen wir die Vielfachreflexion an einer exzitonenfreien Randschicht der Dicke d nach Wolter /4.9/, erhalten wir folgenden Ausdruck für den Reflexionskoeffizienten

$$r_{zz}^* = \frac{(g_2 - g_1)(g_1 + g_0)e^{\rho d} + (g_2 + g_1)(g_1 - g_0)e^{-\rho d}}{(g_2 + g_1)(g_1 + g_0)e^{\rho d} + (g_2 - g_1)(g_1 - g_0)e^{-\rho d}} \quad 4.14$$

für s-Polarisation gelten die Definitionen

$$\begin{aligned} g_0 &= n_0 \cos \alpha \\ g_1 &= n_s \cos \vartheta \\ g_2 &= n_{\text{eff},s} \cos \varphi \\ \rho &= i\omega / cn_s \cos \vartheta \end{aligned} \quad \begin{aligned} \cos &= 1/n_s \sqrt{n_s^2 - n_0^2 \sin^2 \alpha} \\ \cos \psi &= 1/n_{\text{eff},s} \sqrt{n_{\text{eff},s}^2 - n_0^2 \sin^2 \alpha} \end{aligned} \quad 4.15$$

die Aufspaltung des komplexen Ausdruckes r_{zz}^* in Real- und Imaginärteil liefert die gesuchten Größen $r_{zz,u}$ und $\phi_{zz,u}$ des richtungsunabhängigen Falles

$$r_{zz,u}^* = r_{zz,u} e^{i\phi_{zz,u}}$$

b) p-Polarisation

die experimentellen Verhältnisse veranschaulicht nachstehende Abbildung

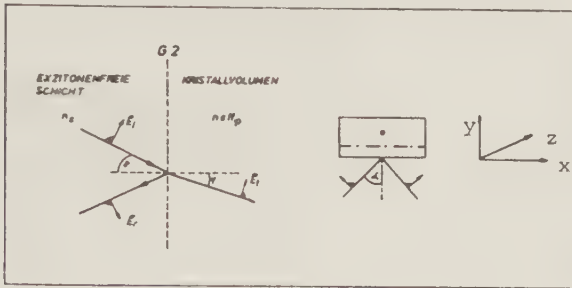


Abb. 4.4 Reflexion im Dreischichtmodell, p-Polarisation
richtungsunabhängiger Fall

Der Reflexionskoeffizient für die zweite Grenzschicht lautet

$$r_p = \frac{n_{\text{eff},p} \cos \vartheta - n_s}{n_{\text{eff},p} \cos \vartheta + n_s} \quad 4.16$$

der effektive Brechungsindex wird der nichtresonanten Hintergrund-DK gleichgesetzt

$$n_{\text{eff},p}^2 = \epsilon_{\infty, \perp} \quad 4.17$$

Die Berücksichtigung der Vielfachreflexion nach Wolter führt zum Reflexionskoeffizienten

$$r_{xx,u}^* = r_{yy,u}^* \quad 4.18$$

$$= \frac{(g_2 - g_1)(g_1 + g_0)e^{\rho d} + (g_2 + g_1)(g_1 - g_0)e^{-\rho d}}{(g_2 + g_1)(g_1 + g_0)e^{\rho d} + (g_2 - g_1)(g_1 - g_0)e^{-\rho d}}$$

Für p-Polarisation gelten hierbei die Definitionen

$$\begin{aligned} g_0 &= 1/n_0 \cos \alpha \\ g_1 &= 1/n_s \cos \vartheta \\ g_2 &= 1/n_{\text{eff},p} \cos \varphi \\ \rho &= i\omega/cn_s \cos \vartheta \end{aligned} \quad \begin{aligned} \cos \vartheta &= 1/n_s \sqrt{n_s^2 - n_0^2 \sin^2 \alpha} \\ \cos \varphi &= 1/n_{\text{eff},p} \sqrt{n_{\text{eff},p}^2 - n_0^2 \sin^2 \alpha} \end{aligned} \quad 4.19$$

die Darstellung von r_{xx} bzw. r_{yy} in Polarkoordinaten liefert uns die gewünschten Größen.

Damit können wir für den richtungsunabhängigen Fall die Transformation der elektrischen Feldamplitude der einlaufenden Welle $\underline{E}^i$ in die Feldamplitude der reflektierten Welle angeben,

$$\begin{bmatrix} E_x^r \\ E_y^r \\ E_z^r \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} r_{xx,u}^* & 0 & 0 \\ 0 & r_{yy,u}^* & 0 \\ 0 & 0 & r_{zz,u}^* \end{bmatrix} \begin{bmatrix} E_x^i \\ E_y^i \\ E_z^i \end{bmatrix} \quad 4.20$$

$$E_i^r = r_{ij}^u E_j^i$$

4.3.2 Richtungsabhängiger Fall

Die Einfallsebene enthält die c-Achse; der Kristall ist bezüglich der Einfallsebene anisotrop.

Je nach Polarisation der einlaufenden Lichtwelle sind wieder zwei Fälle zu unterscheiden.

a) Senkrechte Polarisation

Die Polarisation steht senkrecht auf dem Hauptschnitt; in der Sprache der Kristalloptik liegt der Fall der ordentlichen Wellenausbreitung vor.

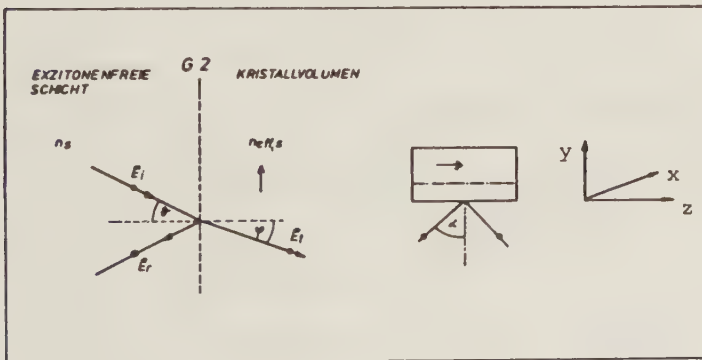


Abb. 4.5 Reflexion im Dreischichtmodell, s-Polarisation ordentlicher Fall

Der Kristall ist bezüglich der Einfallsebene anisotrop. Die entstehenden Polaritonmoden sind longitudinal-transversal gemischt; der elektrische Feldvektor der "mixed-mode" Wellen schließt mit der Wellennormalen den Winkel φ_i ein. Er beschreibt die Abweichung der Polaritonwelle von einer transversalen Welle und wird aus $\Delta(\underline{\epsilon} \cdot \underline{E}) = 0$ berechnet.

$$\tan \psi_i = \frac{\epsilon_{\perp}}{\epsilon_{\parallel}} \tan \varphi_i \quad 4.22$$

Die parallele Komponente $\epsilon_{\parallel}$ des dielektrischen Tensors enthält winkelabhängige Terme: die Eigenfrequenz, die Oszillatorstärke und die Masse.

Die Winkelabhängigkeit der Masse des i-ten Polaritonastes

$$\frac{1}{M_i} = \frac{\cos^2 \varphi_i}{M_{\parallel}} + \frac{\sin^2 \varphi_i}{M_{\perp}} \quad 4.23$$

$$\text{mit } M_{\perp} = 0.79m_e, \quad M_{\parallel} = 0.59m_e$$

wird vernachlässigt, da durch den Brechungsindex n_i in der Resonanz nur kleine Winkel φ_i im Medium möglich sind und die Massenanisotropie für ZnO sehr klein ist.

Die Eigenfrequenz ω_R hängt nach Hopfield und Thomas /4.1/ vom Einfallswinkel φ ab.

$$\omega_R^2 = \omega_T^2 - (\omega_L^2 - \omega_T^2) \sin^2 \varphi \quad 4.24$$

für senkrechte Inzidenz stimmt die Eigenfrequenz des mixed modes noch mit der einer transversalen Polaritonwelle überein, mit zunehmendem Einfallswinkel verschiebt sich die Eigenfrequenz zur longitudinalen Eigenfrequenz hin, gleichzeitig nimmt die Oszillatorstärke f ab, gemäß

$$f = \epsilon_{\infty} (\omega_L^2 - \omega_T^2) \cos^2 \varphi \quad 4.25$$

damit lautet die parallele Komponente $\epsilon_{\parallel}$ des dielektrischen Tensors

$$\epsilon_{\parallel}(\omega, \underline{k}) = \epsilon_{\infty} \left(1 + \frac{\omega_L^2 - \omega_T^2 \cos^2 \varphi}{\omega_R^2 - \omega^2 - i\omega\Gamma + \hbar\omega_R\omega^2 n^2 / (Mc^2)} \right) \quad 4.26$$

Setzt man den Ausdruck 4.26 in die Dispersionsrelation der außerordentlichen Wellenausbreitung

$$n^2 = \frac{\epsilon_{\perp} \epsilon_{\parallel}}{\epsilon_{\perp} \cos^2 \varphi + \epsilon_{\parallel} \sin^2 \varphi} \quad 4.27$$

ein, nimmt für $\epsilon_{\perp}$ den Wert des nichtresonanten Hintergrundes ϵ_{∞} an und berücksichtigt die Snellius-Beziehung

$$n_s \sin \vartheta = n \sin \varphi \quad 4.28$$

erhält man eine Gleichung 6. Grades in n^2 , deren Wurzeln die drei Brechungsindices n_1, n_2, n_3 der beteiligten Polaritonäste liefern. Die Winkel φ_1 und φ_2 sind dann ebenfalls bestimmt.

In den Maxwell-Randbedingungen für p-Polarisation ist zu berücksichtigen, daß die elektrische Feldamplitude der Polaritonenmoden nicht mehr senkrecht auf der Ausbreitungsrichtung steht wie in den vorausgegangenen Fällen. Die Zerlegung der elektrischen Feldamplituden in Komponenten senkrecht und parallel zur Oberfläche liefert die Randbedingungen

$$(E_i - E_r) \cos \vartheta = E_1 \cos \psi_1 + E_2 \cos \psi_2 + E_3 \cos \psi_3 \quad (1) \quad 4.29$$

$$(E_i + E_r) n_s = E_1 n_1 \cos(\psi_1 - \varphi_1) + E_2 n_2 \cos(\psi_2 - \varphi_2) + E_3 n_3 \cos(\psi_3 - \varphi_3) \quad (2)$$

die beiden zusätzlichen Randbedingungen lauten

$$n_1^2 E_1 + n_2^2 E_2 + n_3^2 E_3 = 0 \quad (3)$$

Als Lösung des Gleichungssystems 4.29 erhalten wir den effektiven Brechungsindex

$$n_{\text{eff},p} = \frac{n_s}{\cos \vartheta} \frac{\cos \psi_1 + \cos \psi_2 + \cos \psi_3}{n_1 \cos(\psi_1 - \varphi_1) + c_2 n_2 \cos(\psi_2 - \varphi_2) + c_3 n_3 \cos(\psi_3 - \varphi_3)}$$

mit

$$c_2 = -\frac{n_1^2}{n_2^2} \frac{\sin(\psi_1 - \varphi_1) - \cos(\psi_1 - \varphi_1) \tan(\psi_3 - \varphi_3)}{\sin(\psi_2 - \varphi_2) - \cos(\psi_2 - \varphi_2) \tan(\psi_3 - \varphi_3)}$$

$$c_3 = -\frac{n_1^2}{n_2^2} \left(\frac{\cos(\psi_1 - \varphi_1)}{\cos(\psi_3 - \varphi_3)} - \frac{\cos(\psi_2 - \varphi_2) \sin(\psi_1 - \varphi_1) - \cos(\psi_1 - \varphi_1) \tan(\psi_3 - \varphi_3)}{\cos(\psi_3 - \varphi_3) \sin(\psi_2 - \varphi_2) - \cos(\psi_2 - \varphi_2) \tan(\psi_3 - \varphi_3)} \right)$$

Setzen wir diesen effektiven Brechungsindex $n_{\text{eff},p}$ in die Gleichung 4.18 für die Vielfachreflexion nach Wolter ein mit den Definitionen 4.19 für p-Polarisation, erhalten wir die Ausdrücke $r_{yy,e}^* = r_{zz,e}^*$ für das Reflexionsvermögen des mixed-mode-Falles.

Damit sind wir in der Lage, die Transformation der elektrischen Feldamplitude $\underline{E}^i$ der einlaufenden Lichtwelle in die elektrische Feldamplitude $\underline{E}^r$, der reflektierten Welle für den richtungsabhängigen Fall durchzuführen.

$$\begin{bmatrix} E_x^r \\ E_y^r \\ E_z^r \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} r_{xx}^{*,o} & 0 & 0 \\ 0 & r_{yy}^{*,e} & 0 \\ 0 & 0 & r_{zz}^{*,e} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} E_x^i \\ E_y^i \\ E_z^i \end{bmatrix} \quad 4.31$$

$$E_i^r = r_{ij}^* E_j^i$$

4.4 Berechnung des Reflexionskoeffizienten Gekoppelte Resonanzstelle

Wie bei der isolierten Resonanz ist für die Bestimmung der Reflexionskoeffizienten des A-B-Exzitons die Orientierung der Einfallsebene des Lichts und der reflektierenden Kristallfläche zu berücksichtigen. Man unterscheidet drei Fälle:

- a) die reflektierende Kristallfläche ist eine $(10\bar{1}0)$ -Fläche die Einfallsebene ist senkrecht zur c-Achse orientiert
 $\underline{k} = (k_x, k_y, 0)$ $\underline{E} = (0, 0, E_z)$
er entspricht der richtungsunabhängigen Wellenausbreitung der Kristalloptik und wird in Abschnitt 4.4.1 behandelt.
- b) die reflektierende Kristallfläche ist eine $(10\bar{1}0)$ -Fläche die Einfallsebene ist parallel zur c-Achse orientiert
 $\underline{k} = (0, k_y, k_z)$ $\underline{E} = (E_x, 0, 0_z)$ oder $\underline{E} = (0, E_y, E_z)$
er entspricht der richtungsabhängigen Wellenausbreitung der Kristalloptik und wird im Abschnitt 4.4.2 diskutiert.
- c) die reflektierende Kristallfläche ist eine (0001) -Fläche, die Einfallsebene enthält die c-Achse
dieser quasikubische Fall wurde nicht experimentell untersucht und wird deshalb nicht weiter diskutiert.

4.4.1 Richtungsunabhängiger Fall

Die dielektrische Funktion ist dabei vom Einfallswinkel der einfallenden Lichtwelle unabhängig. Der Kristall ist isotrop bezüglich der Einfallsebene des Lichtes.

Der dielektrische Tensor für das A, B-Exziton in der Näherung des Abschnitts 4.1 lautet:

$$\epsilon(\omega, \underline{k}) = \begin{bmatrix} \epsilon_1(\omega, \underline{k}) & 0 & 0 \\ 0 & \epsilon_1(\omega, \underline{k}) & 0 \\ 0 & 0 & \epsilon_{11, \infty} \end{bmatrix} \quad 4.32$$

mit

$$\begin{aligned} \epsilon_1(\omega, k) = \epsilon_{\infty} \left\{ 1 + \frac{\omega_{RL}^2 - \omega_{AT}^2}{\omega_{BT}^2 - \omega_{AT}^2} \frac{\omega_{AL}^2 - \omega_{AT}^2}{\omega_{AT}^2 + \beta_A k^2 - \omega^2 - i\omega\Gamma_A} + \right. \\ \left. + \frac{\omega_{AL}^2 - \omega_{BT}^2}{\omega_{AL}^2 - \omega_{BT}^2} \frac{\omega_{BL}^2 - \omega_{BT}^2}{\omega_{BT}^2 + \beta_B k^2 - \omega^2 - i\omega\Gamma_B} \right\} \end{aligned} \quad 4.33$$

die Berechnung der Reflexionskoeffizienten erfolgt wieder getrennt für die Polarisation der einlaufenden Lichtwelle senkrecht und parallel zur Einfallsebene.

a) Senkrechte Polarisation

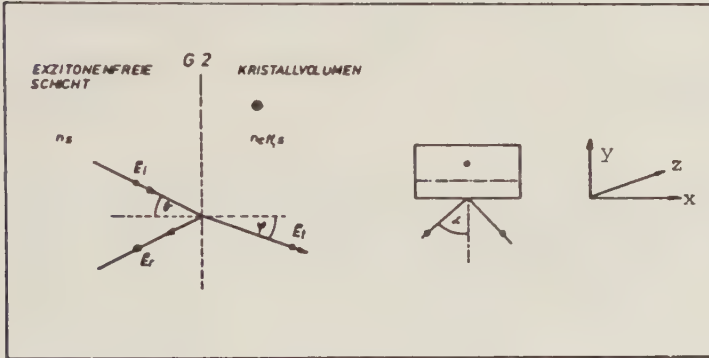


Abb. 4.7 Reflexion im Dreischichtmodell
richtungsunabhängiger Fall,
s-Polarisation

Die Resonanzstelle des A,B-Exzitons liefert keinen Beitrag zur dielektrischen Funktion. In den effektiven Brechungsindex geht lediglich der Wert der Hintergrund-DK ein

$$n_{\text{eff},s} = \frac{\sqrt{\epsilon_{\omega,H}} - n_s \cos \vartheta}{\sqrt{\epsilon_{\omega,H}} + n_s \cos \vartheta} \quad 4.34$$

Der Reflexionskoeffizient $r_{zz,r}^*$ wird nach Wolter aus der Gleichung 4.14 mit den Definitionen 4.15 für s-Polarisation bestimmt.

b) Parallelele Polarisation

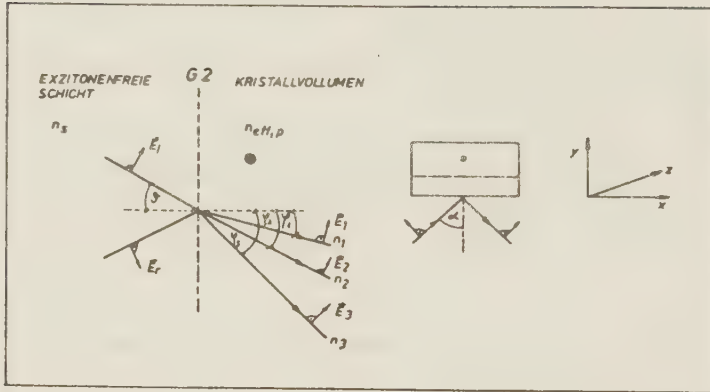


Abb. 4.8 Reflexion im Dreischichtmodell
richtungsunabhängiger Fall
p-Polarisation, A,B-Exziton

In dieser Geometrie können sich 3 rein transversale
Polarisationswellen ausbilden.

Aus der Lösung der Dispersionsgleichung für die Ausbrei-
tung transversaler Wellen zusammen mit 4.33 erhalten wir
die drei Brechungsindices der transversalen Polarisations-
wellen.

Die Maxwell-Randbedingungen für parallele Polarisation lauten:

$$(E_i + E_r) \cos \alpha = E_1 \cos \psi_1 + E_2 \cos \psi_2 + E_3 \cos \psi_3 \quad 4.35(1)$$

$$(E_i - E_r) n_0 = E_1 n_1 + E_2 n_2 + E_3 n_3 \quad (2)$$

Die Verknüpfung der elektrischen Feldamplituden E_i im Medium wird durch die zusätzlichen Randbedingungen festgelegt. Die Hopfield-Thomas-Randbedingungen verlangen, daß der exzitonische Beitrag zur Polarisation an der Oberfläche verschwindet. Zeyher et al. (4.10) erweiterten die Randbedingungen für den Fall mehrerer Resonanzstellen; sie fordern, daß die Beiträge aller Polaritonäste zur Polarisation für jede Resonanzstelle getrennt verschwinden:

$$\epsilon_1^A E_1 + \epsilon_2^A E_2 + \epsilon_3^A E_3 = 0 \quad (3)$$

$$\epsilon_1^B E_1 + \epsilon_2^B E_2 + \epsilon_3^B E_3 = 0 \quad (4)$$

dabei beinhaltet ϵ_1^A den resonanten Beitrag des A-Exzitons zur dielektrischen Funktion ϵ_1 des ersten Polaritonastes.

$$\epsilon_1^A = \frac{\omega_{BL}^2 - \omega_{AT}^2}{\omega_{BT}^2 + \omega_{AT}^2} \cdot \frac{\omega_{AL}^2 - \omega_{AT}^2}{\omega_{AT}^2 - \omega^2 + \beta_A \cdot \omega^2 / c^2 \cdot \epsilon_1 - 1 \cdot \omega \cdot \Gamma_A}$$

Entsprechend werden die vier anderen Beiträge zur Gesamtpolarisation berechnet.

Aus der Lösung der Gleichung 1-4 berechnet sich folgender effektiver Brechungsindex:

$$n_{\text{eff},p}^2 = \frac{a_1^2 \pm \sqrt{a_1^4 - (2a_1 a_2 \sin \vartheta)^2}}{2a_2^2} \quad 4.36$$

$$a_1 = n_0 \cos \alpha \quad (n_1 + E_2/E_1 \quad n_2 + E_3/E_1 \quad n_3)$$

$$a_2 = \cos \alpha \quad (\cos \psi_1 + E_2/E_1 \quad \cos \psi_2 + E_3/E_1 \quad \cos \psi_3)$$

Das Vorzeichen von $n_{\text{eff},p}$ wird so gewählt, daß $\text{Im}(n_{\text{eff},p}) > 0$. Setzen wir $n_{\text{eff},p}$ in Gleichung 4.14 ein mit den Definitionen 4.19 für p-Polarisation, erhalten wir unter Berücksichtigung der Vielfachreflexion die Reflexionskoeffizienten $r_{xx,u}^* = r_{yy,u}^*$.

Damit ist die Reflexionsmatrix für den Fall der richtungs-unabhängigen Wellenausbreitung des A,B-Exzitons bestimmt.

4.4.2 Richtungsabhängiger Fall

Die Einfallsebene enthält die c-Achse, der Kristall ist bezüglich der Einfallsebene anisotrop.

Wiederum sind je nach Polarisation der einlaufenden Lichtwelle zwei Fälle zu unterscheiden:

a) Senkrechte Polarisation

Der elektrische Feldvektor der einlaufenden Welle steht senkrecht auf dem Hauptschnitt. In der Sprache der Kristall-optik entspricht dies dem Fall ordentlicher Wellenausbreitung.

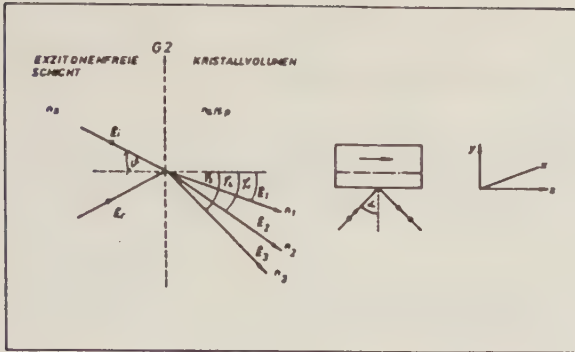


Abb. 4.9 Reflexion im Dreischichtmodell
richtungsabhängiger, ordentlicher Fall
s-Polarisation, A,B-Exziton

In dieser Geometrie werden drei rein transversalen Polarisations-
schwingungen angeregt.

Die Lösung der Dispersionsgleichung mit der dielektrischen
Funktion 4.33 liefert genau wie im richtungsunabhängigen
Fall 4.4.1b die drei Brechungsindizes n_1, n_2, n_3
der beteiligten Polaritonäste.

Die Maxwell-Randbedingungen für senkrechte Polarisation
lauten:

4.38

$$E_i + E_r = E_1 + E_2 + E_3 \quad (1)$$

$$(E_i - E_r) n_s \cos \vartheta = E_1 n_1 \cos \varphi_1 + E_2 n_2 \cos \varphi_2 + E_3 n_3 \cos \varphi_3 \quad (2)$$

hinzu kommen die zusätzlichen Randbedingungen

$$\epsilon_1^A E_1 + \epsilon_2^A E_2 + \epsilon_3^A E_3 = 0 \quad (3)$$

$$\epsilon_1^B E_1 + \epsilon_2^B E_2 + \epsilon_3^B E_3 = 0 \quad (4)$$

Der effektive Brechungsindex hat die Form

$$n_{\text{eff},s}^2 = \frac{\sum_{i=1}^3 n_i \cos \varphi_i E_i}{E_1 + E_2 + E_3} + n_s^2 \sin^2 \varphi \quad 4.39$$

$$\cos \varphi_i = 1/n_i \sqrt{n_i^2 - n_s^2 \sin^2 \varphi}$$

die Amplituden E_i werden aus den zusätzlichen Randbedingungen berechnet.

Aus dem effektiven Brechungsindex 4.39 wird mithilfe von 4.14 und 4.15 der Reflexionskoeffizient $r_{zz,0}^*$ gebildet.

b) Parallele Polarisation

Diese Anordnung entspricht der außerordentlichen Wellenausbreitung der Kristalloptik.

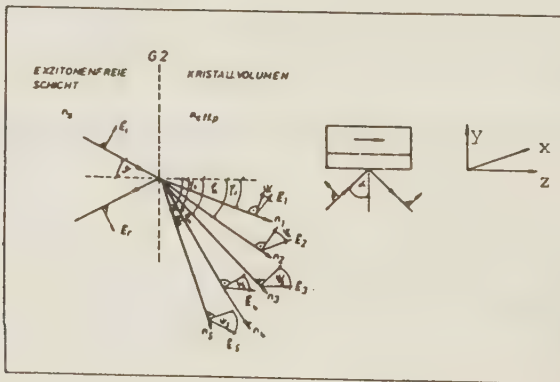


Abb. 4.10 Reflexion im Dreischichtmodell richtungsabhängiger, außerordentlicher Fall p-Polarisation, A, B-Exziton

Im Kristall werden fünf gemischt longitudinal-transversale Polarisationswellen angeregt. Eigenfrequenz, Oszillatorstärke und die Masse hängen vom Einfallswinkel ab.

Die Massenanisotropie des A,B-Exzitons ist sehr gering ($m_{\parallel} = 0.87 m_e$, $m_{\perp} = 0.81 m_e$) und wird im folgenden vernachlässigt.

Die dielektrische Funktion für den außerordentlichen Fall lautet:

$$\epsilon_{yy} = \epsilon_{\infty} \left[1 + \frac{f_a \cos^2 \varphi}{\omega_{RA}^2 - \omega^2 - i\omega\Gamma + \hbar\omega_{RA}\omega^2 n^2 / (M_A c^2)} + \frac{f_b \cos^2 \varphi}{\omega_{RB}^2 - \omega^2 - i\omega\Gamma + \hbar\omega_{RB}\omega^2 n^2 / (M_B c^2)} \right] \quad 4.40$$

mit

$$f_a = (\omega_{BL}^2 - \omega_{AR}^2) (\omega_{AL}^2 - \omega_{AR}^2) / (\omega_{BR}^2 - \omega_{AR}^2)$$

$$f_b = (\omega_{AL}^2 - \omega_{BR}^2) (\omega_{BL}^2 - \omega_{BR}^2) / (\omega_{AR}^2 - \omega_{BR}^2)$$

$$\cos \varphi = 1/n \sqrt{n^2 - n_0^2 \sin^2 \alpha}$$

ω_{AR} , ω_{BR} sind die winkelabhängigen Eigenfrequenzen der mixed-mode-Wellen.

Für senkrechte Inzidenz erhalten wir rein transversale Wellen mit den transversalen Eigenfrequenzen. Mit zunehmendem Winkel verschiebt sich die Eigenfrequenz zur longitudinalen Eigenfrequenz hin, gleichzeitig nimmt die Oszillatorstärke ab.

Setzen wir die Beziehung 4.40 in die Dispersionsrelation 4.27 für den mixed-mode-Fall ein, erhalten wir ein Polynom 10. Grades in n^2 , dessen Wurzeln die Brechungsindices der fünf Polaritonäste bilden. Daraus können wir, wie in 4.4.1b, mithilfe der Maxwellrandbedingungen und der zusätzlichen Randbedingungen den effektiven Brechungsindex und die Reflexionskoeffizienten $r_{zz,e}^* = r_{yy,e}^*$ ausrechnen.

Wir haben damit die Transformation für den richtungsabhängigen Fall im Frequenzbereich des A,B-Exzitons gefunden.

$$\begin{bmatrix} E_x^r \\ E_y^r \\ E_z^r \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} r_{xx,o}^* & 0 & 0 \\ 0 & r_{yy,e}^* & 0 \\ 0 & 0 & r_{zz,e}^* \end{bmatrix} \begin{bmatrix} E_x^i \\ E_y^i \\ E_z^i \end{bmatrix} \quad 4.41$$

4.5 Diskussion des Einflusses der Parameter M, d, Γ, α

4.5.1 Einfluss der Dämpfung auf den Brechungsindex

In die Berechnung der Brechungsindizes geht als einziger freier Parameter die Dämpfung Γ ein. Ihr Einfluss soll am Beispiel des C-Exzitons aufgezeigt werden.

Die Abhängigkeit des Brechungsindex n_1 des unteren Polaritonastes von Γ ist gering. Sowohl Real- als auch Imaginärteil variieren kaum mit Γ (s. Abb. 4.11).

Der Brechungsindex n_L des longitudinalen Exzitons ist stark dämpfungsabhängig (s. Abb. 4.12).

für $\Gamma = 0$ trägt das longitudinale Exziton nur für $\omega > \omega_L$ zum Realteil des Brechungsindex bei, mit steigendem Γ erhält n_L einen wachsenden Realteil für $\omega < \omega_L$ mit wachsendem Γ fällt der Imaginärteil schwächer für $\omega > \omega_L$, das longitudinale Exziton trägt in einem breiteren Frequenzbereich um ω_L zum Brechungsindex bei.

Am deutlichsten zeigt sich der Einfluß der Dämpfung auf den Brechungsindex n_2 des oberen Polaritons (s. Abb. 4.13).

Für $\Gamma = 0$ liefert er nur für $\omega > \omega_L$ einen Beitrag zum Brechungsindex für $\Gamma > 0$ existiert überall ein reeller Wert von n_2 , die verbotene Zone zwischen ω_L und ω_T wird aufgehoben, d.h. die reflektierte Intensität ist im ganzen Frequenzbereich < 1 ;

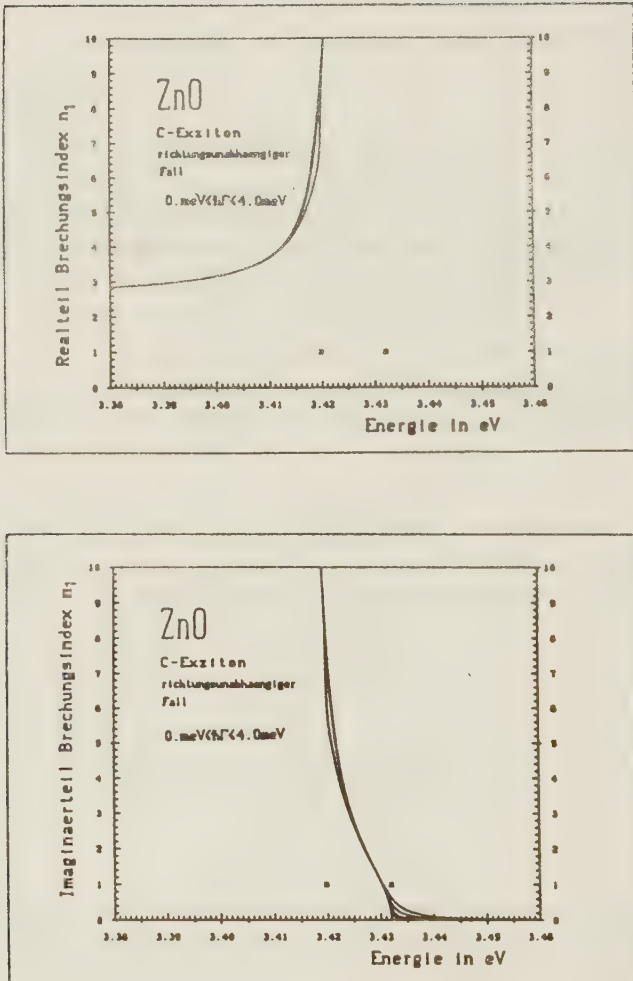


Abb. 4.11 Real- und Imaginärteil des Brechungsindex n_1 des unteren Polaritonastes, Scharparameter ist die Dämpfung. die Quadrate markieren die transversale und longitudinale Eigenfrequenz des C-Exzitons.

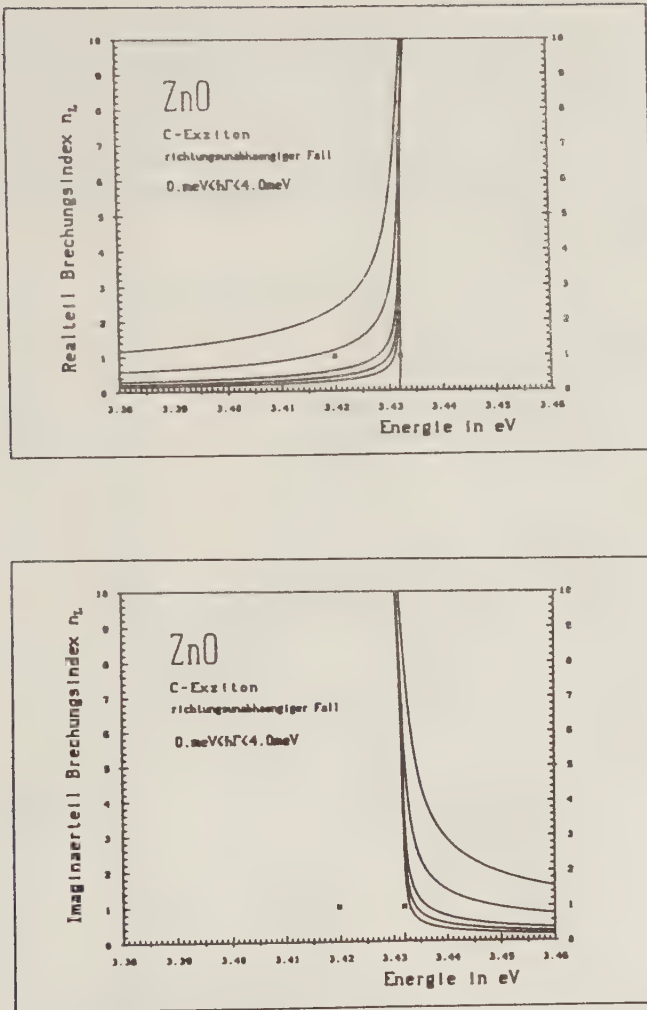


Abb. 4.12 Real- und Imaginärteil des Brechungsindex n_r des longitudinalen Exzitons, Scharparameter ist die Dämpfung Γ die Quadrate markieren die transversale und longitudinale Eigenfrequenz des C-Exzitons.

Für grosse Werte von Γ ($\approx 4\text{meV}$) überschneiden sich die Brechungsindizes des oberen und des unteren Polaritons in der Umgebung von ω_T . Im Phasenspektrum (Abb. 4.17) verschwindet der Phasensprung. Die Entwicklung des Verlaufs der Brechungsindizes mit der Dämpfung zeigt die Abb. 4.14.

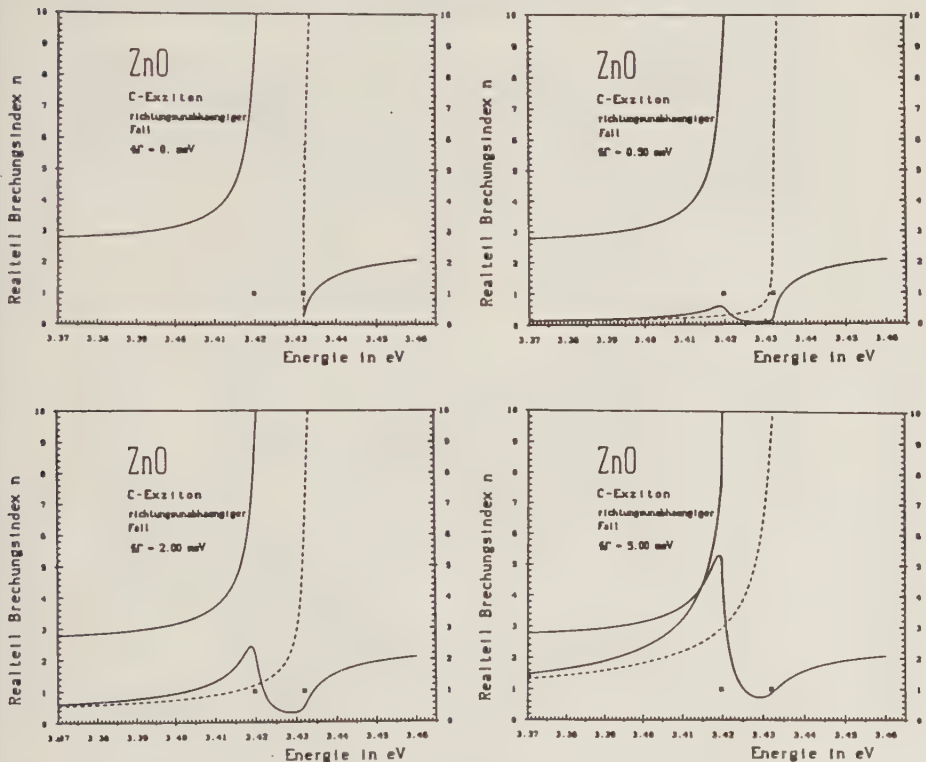


Abb. 4.14 Realteil der Brechungsindizes n_1, n_2, n_L . Parameter ist die Dämpfung Γ . die Quadrate markieren die transversale und longitudinale Eigenfrequenz des C-Exzitons.

4.5.2 Einfluß verschiedener Parameter auf das Reflexionsvermögen

In diesem Abschnitt wird, wieder am Beispiel des C-Exzitons, der Einfluß der exzitonenischen Parameter, der Masse M und der Dämpfung Γ , der exzitonenfreien Randschicht d und des Einfallswinkels α , auf die reflektierte Intensität R und die Phasendifferenz zwischen der senkrecht und parallel zur Einfallsebene polarisierten Komponente der reflektierten Welle diskutiert.

Exzitonenmasse M

Mit steigender Exzitonenmasse M wird der Einfluß der räumlichen Dispersion reduziert, zwischen ω_T und ω_L entsteht (für $\Gamma = 0$) eine verbotene Zone, die reflektierte Intensität nähert sich 1 (s. Abb. 4.15).

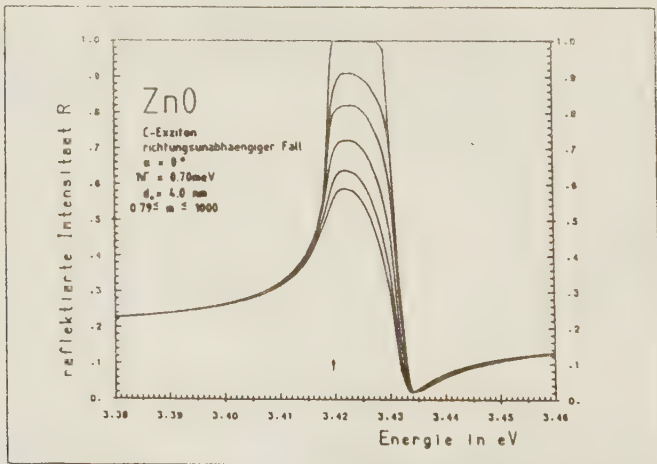


Abb. 4.15 Reflektierte Intensität
Scharparameter ist die Exzitonenmasse M
 $M = (0.79, 1.5, 2.0, 5.0, 10.0, 100.0) m_e$

Dem Entstehen einer verbotenen Zone entspricht eine Entkopplung des oberen und unteren Polaritonastes. Die Phasenverschiebung durch das untere Polariton bildet sich nicht voll aus, da sie schon im Resonanzbereich des oberen Polaritons liegt. Oberhalb von ω_L koppelt die Phase an die des oberen Polaritonastes an (Abb.4.16).

Bei einem grösseren LT-Split als ihn das C-Exziton besitzt, entsteht auch bei ω_T der volle Phasensprung einer erzwungenen Schwingung.

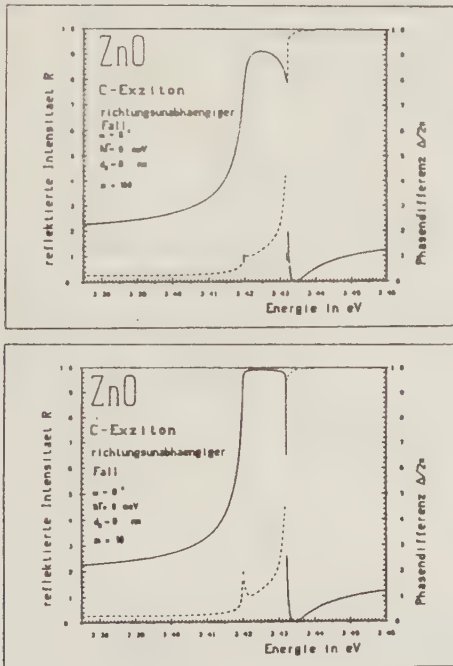
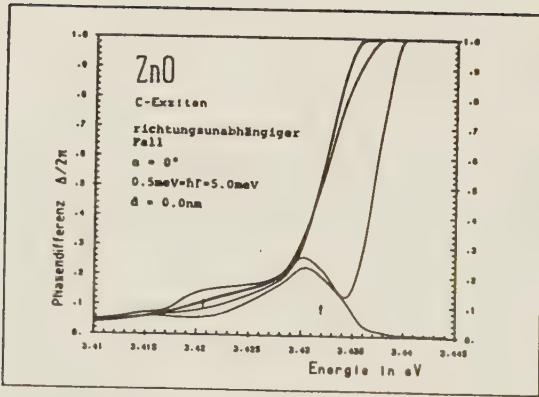
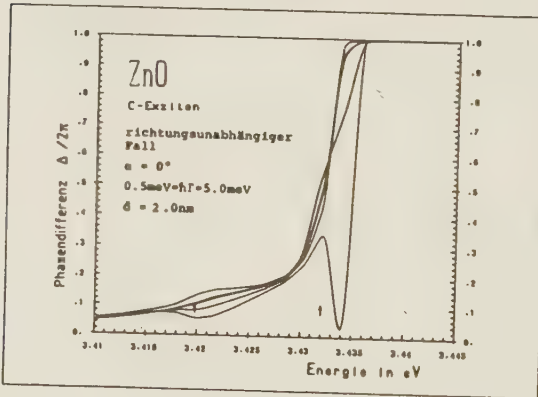


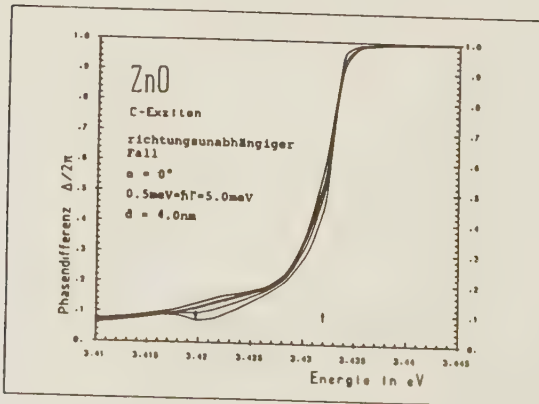
Abb. 4.16 reflektierte Intensität R (durchgezogene Linie) und Phasendifferenz Δ (unterbrochene Linie) zwischen einfallendem und reflektiertem Strahl für zwei verschiedene Exzitonmassen M ;
oben: $M=10m_e$ unten: $M=100m_e$



4.17a

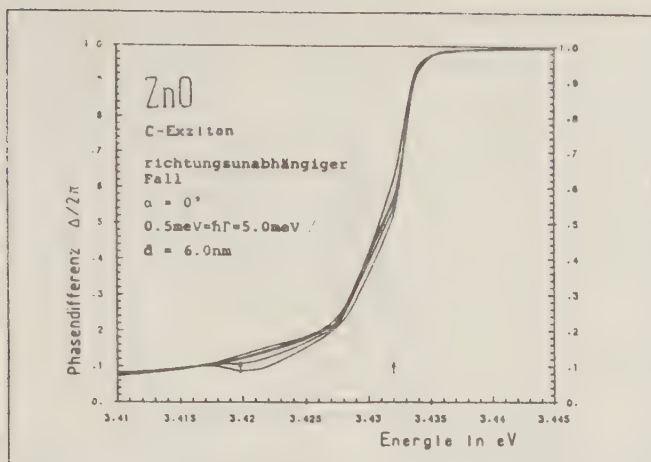


4.17b

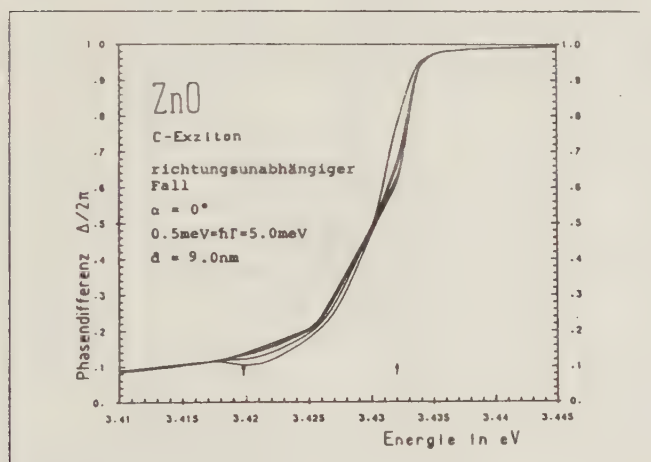


4.17c

Abb. 4.17 a-c Phasendifferenz



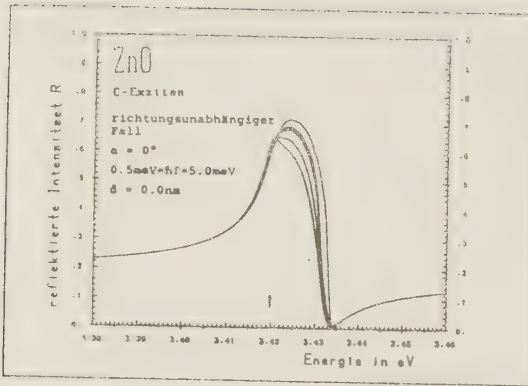
4.17d



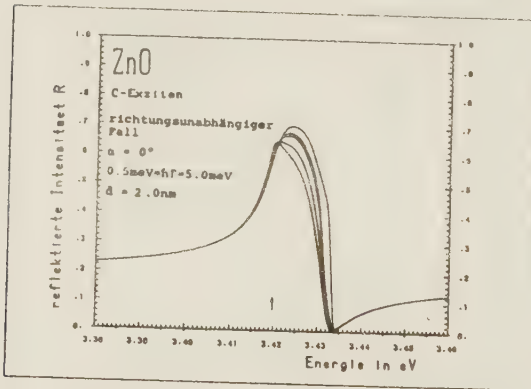
4.17e

Abb. 4.17 d,e Phasendifferenz

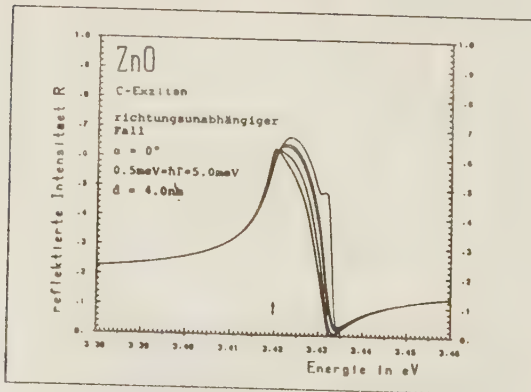
Abb. 4.17 Spektrale Abhängigkeit der Phasendifferenz Δ für verschiedene Dicken der exzitonfreien Randschicht d . Scharparameter ist die Dämpfung $\hbar\Gamma$ ($\hbar\Gamma = (0.5, 0.7, 1.0, 2.0, 5.0) \text{ meV}$); die Pfeile markieren die longitudinale und transversale Eigenfrequenz des C-Exzitons.



4.18a

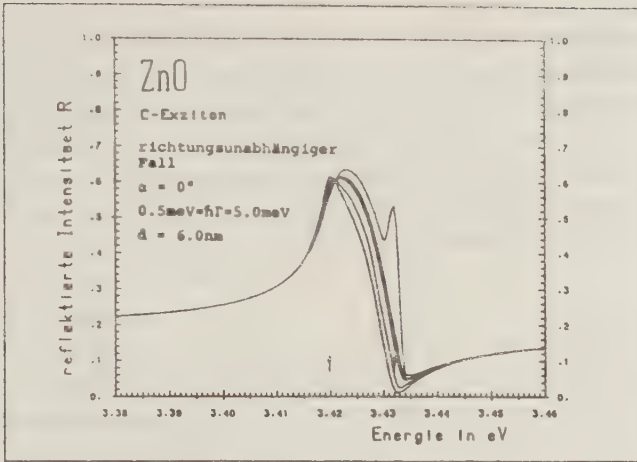


4.18b

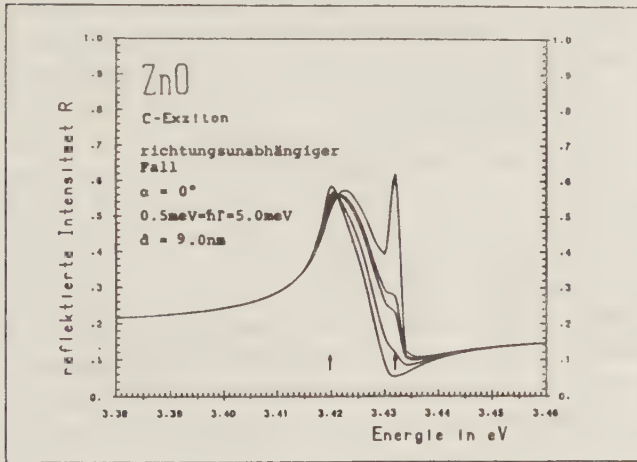


4.18c

Abb. 4.18 a-c reflektierte Intensität



4.18d



4.18e

Abb. 4.18 d,e reflektierte Intensität

Abb. 4.18 Spektrale Abhängigkeit der reflektierten Intensität R für verschiedene Dicken der exzitonenfreien Randschicht d . Scharparameter ist die Dämpfung Γ
 $\hbar\Gamma = (0.5, 0.7, 1.0, 2.0, 5.0) \text{ meV}$;
 die Pfeile markieren die longitudinale und transversale Eigenfrequenz des C-Exzitons.

Dämpfung

Mit wachsender Dämpfung Γ wird die maximale reflektierte Intensität reduziert, gleichzeitig wird das Reflexionsmaximum schmaler entsprechend der enger werdenden verbotenen Zone, bei kleiner Dämpfung kann bei ω_L in Abhängigkeit von der Dicke der exzitonenfreien Randschicht ein Zusatzmaximum entstehen (s. Abb. 4.17a). Der Einfluß der Dämpfung auf die Phasendifferenz ist drastisch.

Mit wachsender Dämpfung Γ wächst der Beitrag des oberen Polaritonastes zum Brechungsindex (s. Abb. 4.14). Der Übergang vom unteren zum oberen Polaritonast findet bei einer anderen Frequenz statt. Dieser Übergang macht sich in einem Knick in der Kurve der Phasendifferenz bemerkbar (Pfeil in Abb. 4.17a); wegen der unterschiedlichen Brechungsindices ist die Phasengeschwindigkeit des oberen Polaritonastes höher als die des unteren, die Phase des oberen Astes eilt der des unteren voraus.

Im Bereich der transversalen Eigenfrequenz hängt die Phasendifferenz sehr empfindlich vom Wert der Dämpfung ab.

Exzitonenfreie Randschicht

Erst die Einführung einer exzitonenfreien Randschicht ermöglichte die Interpretation von Reflexionsmessungen an Verbindungshalbleitern mit großen Exzitonenradien wie CdS /4.15/ und GaAs /4.16/ und begründete damit das Dreischichtenmodell /4.1/.

Die Annahme einer exzitonenfreien Randschicht kann je nach Dicke zu einem Zusatzpeak ober- oder unterhalb von ω_L führen; die Höhe des Peaks ist stark dämpfungsabhängig /4.19/. Die Abb. 4.17 und 4.18 zeigen die Ausbildung des Zusatzpeaks mit wachsender Dicke der exzitonenfreien Randschicht und dessen Dämpfung mit wachsendem Γ für die reflektierte Intensität.

Der Einfluß der exzitonenfreien Randschicht auf die Phasendifferenz ist erwartungsgemäß ebenfalls groß /4.18/ (Abb.4.18). Mit wachsender Dicke erhöht sich der Wert von Γ_{cr} , bei dem kein Phasensprung auftritt, die Kurvenschar verschiebt sich zu kleineren Energien hin; die Schulter in der steil ansteigenden Flanke der Phasenkurve um ω_L prägt sich stärker aus.

Einfallswinkel

Das Reflexionsvermögen bei schräger Inzidenz wird stark von den Maxwell-Randbedingungen beeinflusst.

Für Isolatoren gibt es einen Einfallswinkel

φ_{Br} , den Brewsterwinkel, für den die reflektierte Intensität der parallel polarisierten Komponente verschwindet und die Phasendifferenz zwischen s- und p-Komponente um π springt (s. z.B. /4.14/); anders liegen die Verhältnisse für Substanzen, deren Brechungsindex einen nicht vernachlässigbaren imaginären Anteil besitzt, wie z.B. für Metalle.

Anstelle des Phasensprungs bei einem scharfen Winkel gibt es einen breiten Winkelbereich, in dem sich die Phasendifferenz zwischen s- und p-Polarisation verändert; der p-polarisierte Anteil der reflektierten Welle verschwindet nicht vollständig für einen Winkel, sondern durchläuft ein Minimum. Die nachfolgende Abbildung illustriert die Unterschiede zwischen den Reflexionen an Isolator und Metallen (entnommen aus R.W.Pohl Optik und Atomphysik /4.21/).

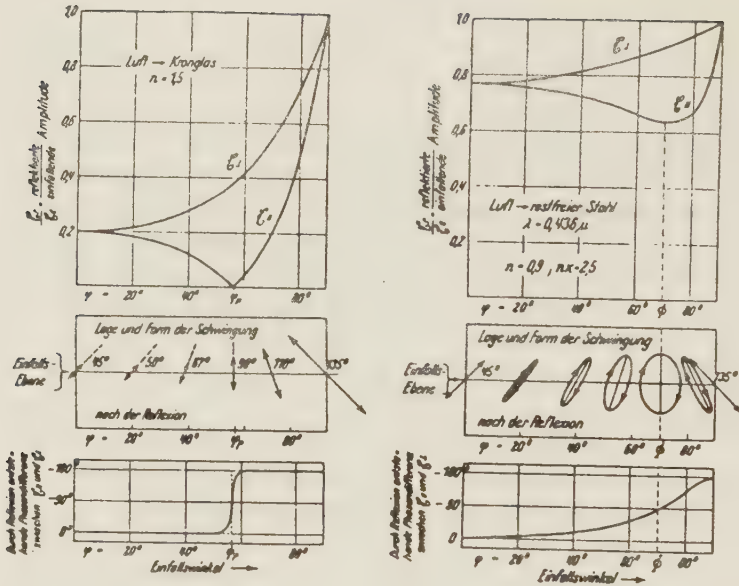


Abb. 4.19 Einfluss des Einfallswinkels auf die Reflexion linear polarisierten Lichts, links für einen Isolator, rechts für ein Metall

Komplizierter sind die Verhältnisse im Energiebereich der exzitonenischen Resonanz. Da sich der Brechungsindex drastisch in Abhängigkeit von der Frequenz verändert, variiert der Winkel, bei den die Brewsterbedingung von $\tan \alpha(\omega)_{Br} = n(\omega)$ erfüllt ist, in einem weiten Bereich. Außerdem ändert sich der Charakter des Brechungsindex mit der Frequenz. Bei $\omega \approx \omega_L$ erreicht der Realteil des Brechungsindex ein Minimum, der Imaginärteil ein Maximum, der Imaginärteil bestimmt den Wert des Brechungsindex, das Amplitudenverhältnis und die Phasendifferenz verhält sich in diesem Frequenzbereich wie bei einem Metall. Außerhalb dieses Bereiches trägt der Imaginärteil wenig zum Brechungsindex bei, Amplitudenverhältnis und Phasendifferenz entsprechen denen eines Isolators.

Die Abb. 4.20 zeigt den Einfluss von Einfallswinkel und exzitonischer Resonanz auf die Phasendifferenz Δ zwischen der parallel und senkrecht zur Einfallsebene polarisierten Komponente der reflektierten Welle:

- I wir befinden uns ausserhalb der Resonanz und unterhalb des Brewsterwinkels, die Phasendifferenz beträgt $-\pi$;
- II die Phasendifferenz wird durch die exzitonische Resonanz bestimmt;
- III der Peak ist durch den grossen Beitrag des Imaginärteils des effektiven Brechungsindex verursacht;
- IV in diesem Bereich ist die Brewsterbedingung erfüllt, die Phasendifferenz zwischen s- und p-Komponente der reflektierten Welle verschwindet;
- V die Ankopplung an den dielektrischen Hintergrund bewirkt, dass die Phase wieder ihren ursprünglichen Wert annimmt.

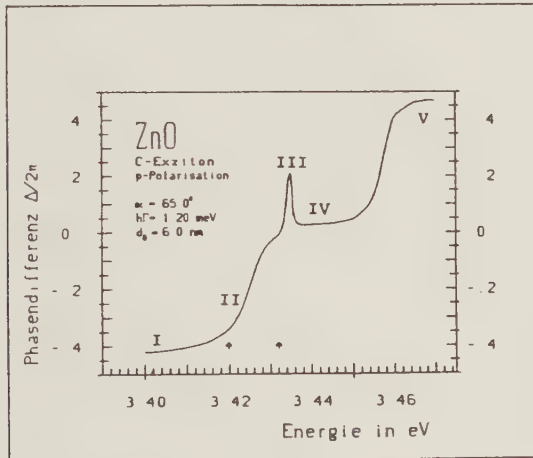


Abb. 4.20 Bereiche im Verlauf der Phasendifferenz Δ zwischen der parallel und senkrecht zur Einfallsebene polarisierten Komponenten der reflektierten Lichtwelle, berechnet für das C-Exziton mit den Parametern $\alpha=65^\circ$, $\hbar\Gamma=1.2$ meV, $d=6$ nm.

4.6 Exzitonischer Brewstereffekt

Das Zusammenwirken von schräger Inzidenz, exzitonenfreier Randschicht und exzitonischer Resonanz führen im Spektrum der Phasendifferenz zu einem exzitonischen Brewstereffekt, der zuerst von Petsov und Selkin /4.19/ experimentell in ZnTe beobachtet wurde.

Der "normale" Brewstereffekt ist charakterisiert durch das Verschwinden der parallelen Komponente r_p im Reflexionsvermögen eines transparenten Dielektrikums bei einem Einfallswinkel α_{Br} , dem Brewsterwinkel, gleichzeitig springt die Phasendifferenz $\Delta = \Delta_p - \Delta_s$ um $\pm \pi$ (Abb. 4.19 a). Die Absorption im Medium bewirkt, daß r_p nicht ganz verschwindet und der abrupte Phasensprung bei α_{Br} ausschmiert (Abb. 4.19 b).

Der exzitonische Brewstereffekt ist analog dazu definiert durch einen Phasensprung von π der Phasendifferenz Δ und durch ein Minimum von r_p für einen Winkel α_{Br} . Seine Abhängigkeit von Einfallswinkel, exzitonenfreier Randschicht, Dämpfung und Masse der Exzitonen haben Petsov und Selkin /4.20/ hergeleitet. Der exzitonische Brewstereffekt manifestiert sich durch eine Phasenverschiebung von $+\pi$ des Phasenspektrums relativ zum Phasenspektrum unterhalb des Brewsterwinkels. Er kann im Gegensatz zum normalen Brewstereffekt auch in der s-Polarisation auftreten, wenn die Kristallsymmetrie in dieser Polarisationsrichtung einen resonanten Übergang aufweist; dann verschwindet r_s und die Phase springt um π .

Der exzitonische Brewstereffekt wurde experimentell in ZnP_2 und ZnTe von Petsov und Selkin /4.20/ nachgewiesen (Abb. 4.20). Die experimentellen Verhältnisse sind vergleichbar mit dem richtungsunabhängigen Fall des C-Exzitons in ZnO im Abschnitt 7.1.1.

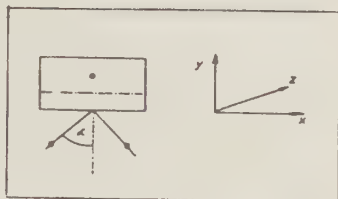
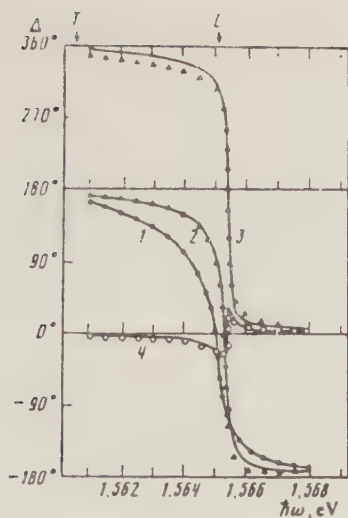


Abb. 4.20 Phasenspektrum im Energieintervall des $n=1$ Exzitons eines orthorhombischen ZnP_2 -Kristalls ($T=2\text{K}$) für verschiedene Einfallswinkel des Lichts, $\alpha = 10^\circ$ (Kurve 1), 65° (2), 79° (3) 84° (4); die Punkte stellen die Messwerte dar, die durchgezogenen Kurven wurden nach dem Thomas-Hopfield-Modell berechnet. (entnommen aus 4.20)

Eine schwarze Modifikation von ZnP_2 ist orthorhombisch; sie besitzt parallel zur C_{22} -Achse einen dipolerlaubten exzitonischen Übergang. Beobachtbar ist in der Geometrie von Abb. 4.20 der exzitonische Brewstereffekt für die s-polarisierte Komponente. Die Phasenverschiebung um $-\pi$ zwischen den Kurven 2 ($\alpha = 56^\circ$) und 4 ($\alpha = 85^\circ$) oberhalb der exzitonischen Resonanz beruht nach Petsov und Selkin auf dem normalen Brewstereffekt. Die Phasenverschiebung um $+\pi$ von Kurve 2 ($\alpha = 65^\circ$) und Kurve 3 ($\alpha = 79^\circ$) und die radikale Veränderung der Form von Kurve 3 ($\alpha = 79^\circ$) nach 4 ($\alpha = 85^\circ$) ist eine Konsequenz des exzitonischen Brewstereffekts.

5. Ellipsometrie

5.1 Einführung

Ellipsometrie kann ganz allgemein definiert werden als die Messung des Polarisationszustandes einer polarisierten Welle /5.1/. Im folgenden werden wir uns auf die Ellipsometrie an Lichtwellen beschränken.

Eine der ersten Veröffentlichungen über Ellipsometrie stammt von P. Drude /5.2/ aus dem Jahr 1889. Er bestimmte die optischen Konstanten von Spaltflächen und dünnen Oberflächenschichten auf Antimonglanz und Tellurwismuth.

Obwohl Drude schon damals die Möglichkeiten der Ellipsometrie erkannt hatte, konnte sich die Meßmethode wegen des hohen Rechenaufwandes beim Lösen der komplexen Gleichungssysteme nicht durchsetzen. Die Entwicklung auf dem Rechnermarkt und die zunehmende technologische Bedeutung dünner Schichten ließen das Interesse an der Ellipsometrie wachsen. Die theoretischen Grundlagen wurden erweitert auf die Behandlung anisotroper /5.3/ und inhomogener /5.4/ Systeme; eine Vielzahl von Meßanordnungen entstand im Zusammenhang mit neuen Anwendungsmöglichkeiten /5.1/. Allen ellipsometrischen Anordnungen gemeinsam ist das Schema



Abb. 5.1 Diagramm einer allgemeinen Ellipsometeranordnung
Lichtquelle-Polarisator- beobachtetes System
Analysator-Detektor.

Eine monochromatische Welle aus der Lichtquelle L wird vom Polarisator P in einen definierten Polarisationszustand versetzt. Die Wechselwirkung mit dem zu untersuchenden System S verändert den ursprünglichen Polarisationszustand (und andere Zustände auch). Aus der Messung des Endzustands der Polarisation im Analysator A für verschiedene Anfangszustände kann das Transformationsgesetz für die Polarisation durch das System S bestimmt werden. Aus dem Transformationsgesetz, und der elektromagnetischen Theorie der Wechselwirkung zwischen Licht und Materie kann dann auf den inneren, polarisationsverändernden Zustand geschlossen werden.

Wir wollen annehmen, daß die Wechselwirkung zwischen Licht und dem System linear und frequenzerhaltend ist. Der Polarisationszustand kann durch drei Prozesse oder Kombinationen davon verändert werden:

a) Reflexion oder Beugung

Der Polarisationszustand von Licht, das an der Grenzfläche zweier optisch verschiedener Medien reflektiert oder gebeugt wird, ändert sich abrupt wegen der unterschiedlichen Reflexions- bzw. Transmissionskoeffizienten senkrecht und parallel zur Einfallsebene. Typische Anwendungsgebiete der Reflexions- und Beugungsellipsometrie sind:

- Bestimmung der dielektrischen Funktion von dünnen Filmen und des Volumens
- Beobachtung der Wachstumsprozesse dünner Schichten oder deren Entfernung
- Messung von Größen, die die optischen Eigenschaften verändern wie Temperatur, Druck, elektromagnetische Felder

b) Transmission

Der Polarisationszustand ändert sich dabei kontinuierlich beim Durchgang durch ein Medium. Transmissionsellipsometrie wird in der physikalischen Chemie häufig eingesetzt zur Bestimmung molekularer Strukturen. Meßgrößen sind die natürliche optische Doppelbrechung und Dichroismus.

c) Streuung

Streuung findet statt in Medien mit räumlich inhomogenem Brechungsindex wie in Aerosolen, Emulsionen, bei Phasenübergängen. Streuungsellisometrie wird benutzt, um die Größe, Dichte und Verteilung von Teilchen in Lösungen zu messen, in der Meteorologie ist die Methode verbreitet zur Untersuchung von Regen-, Wolken- und Hagelbildung.

5.2 Jones Formalismus zur Beschreibung elektromagnetischer Wellen

Üblicherweise wird die Polarisation einer Lichtwelle durch die Komponenten des elektrischen Feldvektors ausgedrückt (z.B. Born und Wolf /5.5/). Einen anderen Zugang eröffnet die Matrixschreibweise von R.C.Jones /5.6/, /5.1/. Sie erleichtert, ebenso wie die Kugeldarstellung von Poincaré /5.7/ die Beschreibung der Wechselwirkung von Licht mit optischen Systemen wie Polarisatoren, Verzögerungsplatten etc.

Der Jones-Formalismus ist nur auf vollständig polarisiertes Licht anwendbar; für teilweise oder nicht polarisiertes Licht muß auf die kompliziertere Schreibweise von Stokes zurückgegriffen werden (s.z.B. /5.1/).

Der elektrische Feldvektor einer ebenen, elektromagnetischen Welle der Frequenz ω , die sich in y-Richtung ausbreitet, läßt sich darstellen als

$$\underline{E}(\omega, t) = \begin{pmatrix} E_{ox} e^{i\varphi_x} \\ E_{oz} e^{i\varphi_z} \end{pmatrix} e^{i(\omega t - ky)} \quad 5.1$$

mit E_{ox} Betrag der elektrischen Feldamplitude in x-Richtung
 E_{oz} Betrag der elektrischen Feldamplitude in z-Richtung
 φ_x Phasenwinkel d. elektrischen Feldamplitude in x-Richtg.
 φ_z Phasenwinkel d. elektrischen Feldamplitude in z-Richtg.

Wir normieren 5.1 durch Division mit $\sqrt{E_{ox}^2 + E_{oz}^2}$

Die normierte Jones-Darstellung einer ebenen, monochromatischen, in x- bzw. z-Richtung linear polarisierten Welle lautet dann:

$$\underline{E}_x = \begin{pmatrix} 1 \\ 0 \end{pmatrix} \quad \underline{E}_z = \begin{pmatrix} 0 \\ 1 \end{pmatrix} \quad 5.2$$

die einer linear polarisierten Welle, die in der x,z-Ebene einen Winkel von 45° einschließt:

$$\underline{E}(45^\circ) = 1/\sqrt{2} \begin{pmatrix} 1 \\ 1 \end{pmatrix} \quad 5.3$$

die Phasendifferenz zwischen den orthogonalen Komponenten verschwindet bei linearer Polarisation, die absoluten Phasen φ_x, φ_z werden Null gesetzt.

Bei zirkular polarisiertem Licht beträgt die Phasendifferenz zwischen den Komponenten $\pi/2$, die Beträge der elektrischen Feldamplituden in x und y-Richtung sind gleich groß; das führt zur Jones-Darstellung

$$\underline{E}_x = 1/\sqrt{2} \begin{pmatrix} 1 \\ i \end{pmatrix} \quad \underline{E}_1 = 1/\sqrt{2} \begin{pmatrix} 1 \\ -i \end{pmatrix} \quad 5.4$$

für eine rechts- bzw. linkszirkular polarisierte Welle.
Eine rechtshändig elliptisch polarisierte Welle schließlich
hat die Darstellung

$$\underline{E}_R = \frac{1}{\sqrt{a^2+b^2}} \begin{bmatrix} a \\ ib \end{bmatrix} \quad 5.5$$

5.3 Optische Komponenten und Reflexion in Jones-Darstellung

Wir nehmen an, eine vollständig polarisierte ebene Welle $\underline{E}_i$ passiert eine optische Komponente oder wird an einer ebenen Fläche reflektiert, die auslaufende Welle habe die Jones-Darstellung $\underline{E}_t$. Die Transformation von $\underline{E}_i$ nach $\underline{E}_t$ liefert eine 2x2-Matrix, die Transmissionsmatrix T der optischen Komponente bzw. die Reflexionsmatrix R der reflektierenden Fläche.

Dies soll an einem einfachen Beispiel gezeigt werden.
Eine unter 45° linear polarisierte Welle mit dem Jones-Vektor $\underline{E}_i$ passiert einen Polarisator mit der Durchlaßrichtung parallel zur z-Achse und der Transmissionsmatrix T ; die transmittierte Welle $\underline{E}_t$ ist parallel zur z-Achse polarisiert, die Intensität wurde halbiert.

Es gilt $\underline{E}_t = T_p \underline{E}_i$

$$\frac{1}{\sqrt{2}} \begin{pmatrix} 0 \\ 1 \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} T_{xx} & T_{xz} \\ T_{zx} & T_{zz} \end{pmatrix} \frac{1}{\sqrt{2}} \begin{pmatrix} 1 \\ 1 \end{pmatrix} \quad 5.6$$

damit lautet die Transmissionsmatrix T_p des idealen Polarisators

$$T_p = \begin{pmatrix} 0 & 0 \\ 0 & 1 \end{pmatrix} \quad 5.7$$

In der Tabelle 5.1 (entnommen aus Hecht-Zajack /5.8/) sind die Transmissionsmatrizen der wichtigsten optischen Komponenten zusammengestellt

Linear optical element	Jones matrix	Linear optical element	Jones matrix
Horizontal linear polarizer $\rightarrow$	$\begin{bmatrix} 1 & 0 \\ 0 & 0 \end{bmatrix}$	Quarter-wave plate fast axis vertical	$e^{i\pi/2} \begin{bmatrix} 1 & 0 \\ 0 & -i \end{bmatrix}$
Vertical linear polarizer $\uparrow$	$\begin{bmatrix} 0 & 0 \\ 0 & 1 \end{bmatrix}$	Quarter-wave plate fast axis horizontal	$e^{i\pi/2} \begin{bmatrix} 1 & 0 \\ 0 & i \end{bmatrix}$
Linear polarizer at $+45^\circ$ $\nearrow$	$\frac{1}{2} \begin{bmatrix} 1 & 1 \\ 1 & 1 \end{bmatrix}$	Homogeneous circular polarizer right $\odot$	$\frac{1}{2} \begin{bmatrix} 1 & i \\ -i & 1 \end{bmatrix}$
Linear polarizer at -45° $\searrow$	$\frac{1}{2} \begin{bmatrix} 1 & -1 \\ -1 & 1 \end{bmatrix}$	Homogeneous circular polarizer left $\odot$	$\frac{1}{2} \begin{bmatrix} 1 & -i \\ i & 1 \end{bmatrix}$

Tabelle 5.1: Jones-Matrix für einige optisch Komponenten

Analog dazu erhalten wir für die Reflexion an einer Grenzfläche

$$\underline{E}_r = \begin{pmatrix} r_{xx} & r_{xz} \\ r_{zx} & r_{zz} \end{pmatrix} \dots \underline{E}_i \quad 5.8$$

Wir nehmen an, daß die reflektierende Substanz optisch nicht aktiv ist, dann verschwinden die Nichtdiagonalelemente der Reflexionsmatrix.

Ist die reflektierende Fläche ein uniaxialer, optisch nicht aktiver Kristall, und ist die experimentelle Geometrie so gewählt, daß entweder die zur Einfallsebene senkrechte oder die parallele Komponente der elektrischen Feldamplitude parallel zur ausgezeichneten Kristallachse orientiert ist, dann lautet 5.8

$$\underline{E}_r = \begin{pmatrix} r_{ss} & 0 \\ 0 & r_{pp} \end{pmatrix} \underline{E}_i \quad 5.9$$

mit

$$r_{ss} = \frac{n_{\text{eff},s}^{-1}}{n_{\text{eff},s} + 1} \quad r_{pp} = - \frac{n_{\text{eff},p}^{-1}}{n_{\text{eff},p} + 1}$$

wobei $n_{\text{eff},p,s}$ die effektiven Brechungsindices der Kristallrichtung senkrecht bzw. parallel zur c-Achse sind, die in Kapitel 4 aus dem Oszillatormodell und den zusätzlichen Randbedingungen gewonnen wurden.

5.4 Reflexionsellipsometrie, PSA-Verfahren

Für die Untersuchung von Dielektrika eignet sich nur die Reflexionsellipsometrie. Die Anordnung der optischen Komponenten zeigt die Abb. 5.2 (entnommen aus [5.1]).

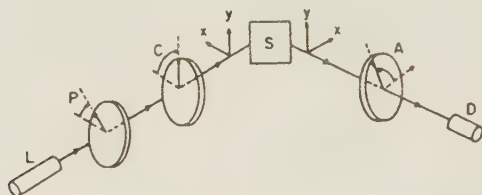


Abb. 5.2 Reflexionsellipsometrie mit dem PPSA-Verfahren

Ein monochromatisches, paralleles Strahlenbündel aus der Lichtquelle L wird durch den Polarisator P linear polarisiert, die elektrische Feldamplitude der Lichtwelle schließt mit der z -Achse den Winkel φ_P ein; nach Durchlaufen des Kompensators C ist der Lichtstrahl elliptisch polarisiert, der Winkel zwischen der schnellen Achse des Kompensators und der z -Achse beträgt φ_C . Die Lichtwelle wird von der Probenoberfläche S reflektiert, die so orientiert ist, daß ihre Eigenpolarisation parallel zur z - und x -Achse gerichtet sind. Der reflektierte Strahl passiert den Analysator A , dessen Winkel mit der z -Achse φ_A beträgt und fällt in den Detektor D .

Man unterscheidet zwei Meßverfahren:

bei der Nullellipsometrie werden die Winkel φ_a , φ_p , φ_c solange variiert, bis das Signal am Detektor verschwindet. Aus den drei Winkeln kann die Reflexionsmatrix eindeutig bestimmt werden. Der Nachteil der Nullellipsometrie besteht darin, daß in einem Intensitätsbereich gemessen wird, in dem der Detektor unempfindlich ist und maximal rauscht; außerdem eignet es sich schlecht für automatische Messungen, von Vorteil ist der geringe Rechenaufwand bei der Auswertung.

Beim Verfahren mit rotierendem Analysator sind die Winkel von Polarisator und Kompensator fest vorgegeben, der Analysator rotiert, $\varphi_0 \leq \varphi_a \leq \varphi_0 + \pi$. Aus der Fourierzerlegung des Signals $I(\varphi_a)$ am Detektor wird der Polarisationszustand der reflektierten Welle berechnet. Der Vorteil des Verfahrens liegt in der leichten Automatisierbarkeit (nur der Analysator muß gedreht werden), das Signal am Detektor ist größer, auf den Kompensator kann unter Umständen verzichtet werden. Nachteilig ist, daß die Auswertung wegen des großen Datenanfalls und der Fourierzerlegung nicht mehr manuell möglich ist.

Für die Nullellipsometrie erwies sich die verwendete Lichtquelle (eine Wolfram-Halogen-Glühlampe) als zu schwach bzw. der Photomultiplier als zu unempfindlich, um mit ausreichender Präzision zu messen. Die Messungen wurden deshalb mit dem PSA-Verfahren (polarizer-sample-analyzer) mit rotierendem Analysator durchgeführt.

5.4.1 Ellipsometergleichung für das PSA-Verfahren

Das PSA-Verfahren kommt von allen ellipsometrischen Verfahren mit den wenigsten Komponenten aus. Der experimentelle Aufbau stimmt mit der Abbildung 5.2 überein, nur der Kompensator wurde entfernt.

Wir wollen nun die Ellipsometergleichungen für die PSA-Anordnung herleiten. Die reflektierende Kristallfläche soll die Eigenschaften besitzen (s.Gl. 5.9): keine optische Aktivität, die Eigenpolarisation des Kristalls ist parallel zu den Achsen des begleitenden Dreibeins gerichtet, dann gilt

$$R = \begin{pmatrix} r_{ss} & 0 \\ 0 & r_{pp} \end{pmatrix} \quad 5.9$$

Der Index s bzw. p bezieht sich wieder auf die Komponenten senkrecht und parallel zur Einfallsebene.

Die Transmissionsmatrix des Polarisators in Gleichung 5.7 wurde hergeleitet für den Fall, daß das Koordinatensystem der Polarisation mit der Eigenpolarisation (d.h. mit der Durchlaßrichtung) des Polarisators übereinstimmt. In der experimentellen Anordnung (Abb.5.2) schließen die Achsen von Polarisator und begleitendem Dreibein den Winkel φ_p ein. Die Transmissionsmatrix im Koordinatensystem des begleitenden Dreibeins lautet:

$$T_p = \begin{pmatrix} 0 & 0 \\ 0 & 1 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \cos \varphi_p & -\sin \varphi_p \\ \sin \varphi_p & \cos \varphi_p \end{pmatrix} \quad 5.10$$

Wir verzichten im folgenden auf die Energiedispersion der Polarisatoren.

Die Transmissionsmatrix eines realen Glan-Thomson-Prismas lautet /5.9/

$$T = \begin{pmatrix} \gamma_A^2 & -i\gamma_A \\ i\gamma_A & 1 \end{pmatrix} \quad \gamma_A = 0.0010 \hbar \omega / eV$$

Die Transmissionmatrix des Analysators lautet analog:

$$T_A = \begin{pmatrix} 0 & 0 \\ 0 & 1 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \cos \varphi_a & \sin \varphi_a \\ -\sin \varphi_a & \cos \varphi_a \end{pmatrix} \quad 5.11$$

der Vorzeichenwechsel in der Rotationsmatrix ist durch den Übergang vom linkshändigen zum rechtshändigen Koordinatensystem durch die Reflexion bedingt.

Die Transformation der Polarisation der einlaufenden Welle $\underline{E}_i$ in die der reflektierten Welle $\underline{E}_r$ ist dann gegeben durch

$$\underline{E}_r = -T_A R T_P \underline{E}_i \quad 5.12$$

oder

$$\begin{pmatrix} E_x^r \\ E_z^r \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} 0 & 0 \\ 0 & 1 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \cos \varphi_a & \sin \varphi_a \\ -\sin \varphi_a & \cos \varphi_a \end{pmatrix} \begin{pmatrix} r_{ss}^* & 0 \\ 0 & r_{pp}^* \end{pmatrix} \begin{pmatrix} 0 & 0 \\ 0 & 1 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \cos \varphi_p & -\sin \varphi_p \\ \sin \varphi_p & \cos \varphi_p \end{pmatrix} \begin{pmatrix} E_x^i \\ E_z^i \end{pmatrix}$$

Der Detektor mißt das Betragsquadrat I der reflektierten elektrischen Feldamplitude $\underline{E}_r$

$$I = \underline{E}_r^* \underline{E}_r = 1 + \alpha \sin 2\varphi_a + \beta \sin 2\varphi_p \quad 5.13$$

mit

$$\alpha = \frac{r_{ss}^2 / r_{pp}^2 \cos^2 \varphi_p - \sin^2 \varphi_p}{r_{ss}^2 / r_{pp}^2 \cos^2 \varphi_p + \sin^2 \varphi_p} \quad 5.14$$

$$\beta = \frac{r_{ss} \cos \Delta \sin 2\varphi_p}{r_{pp} r_{ss}^2 / r_{pp}^2 \cos^2 \varphi_p + \sin^2 \varphi_p}$$

$$r_{ss}^* = r_{ss} e^{i\Delta_{ss}}$$

$$r_{pp}^* = r_{pp} e^{i\Delta_{pp}}$$

$$\Delta = \Delta_{ss} - \Delta_{pp}$$

Die Beziehung 5.13 entspricht den ersten Gliedern einer normierten Fourierreihe.

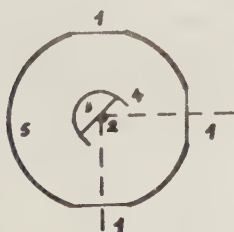
Beim PSA-Verfahren wird durch den Koeffizienten α der Betrag des Quotienten des Reflexionsvermögens senkrecht und parallel zur Einfallsebene bestimmt. Das Vorzeichen des Koeffizienten β wird durch das Produkt $(r_{ss}/r_{pp})\cos\Delta$ bestimmt. Im Resonanzbereich exzitonischer Polaritonen kann der effektive Brechungsindex n_{eff} in der Umgebung von ω_L kleiner eins werden, damit wird das Reflexionsvermögen negativ. Das Vorzeichen von $\cos\Delta$ ist durch β nicht eindeutig bestimmt und muß mit Hilfe eines Kompensators oder aus der Theorie festgelegt werden.

Die experimentelle Geometrie (s. Kapitel 7) wurde so gewählt, daß entweder die s- oder p-Komponente des Reflexionsvermögens in den Bereich der exzitonischen Resonanz fällt; das Vorzeichen der nicht resonanten Komponente des Reflexionsvermögens ist immer positiv, so daß nun die Vorzeichen von r_{ss}/r_{pp} und $\cos\Delta$ eindeutig sind. Die Einschränkung der Geometrie bedeutet jedoch, daß auf die Messung des mixed-mode-Falles verzichtet werden mußte.

6. Experimenteller Aufbau

6.1 Versuchsaufbau

Die Reflexionsmessungen wurden nach dem PSA-Verfahren durchgeführt (s. Abb. 6.2). Eine 100 Watt Wolfram-Halogen-Glühlampe, die von einer stabilisierten Gleichspannungsquelle versorgt wurde, diente als Lichtquelle. Um die Ausbeute im UV zu erhöhen, wurde sie mit einer Überspannung (14V) betrieben. Über eine Zwischenabbildung wird der divergente Lichtstrahl auf die optische Achse des Monochromators gebracht und geschoppt. Durch eine Lochmaske am Ausgangsspalt des Monochromators und eine nachfolgende Linsencombination wird paralleles Licht mit einer Strahldivergenz von etwa 3° erzeugt. Der durch ein Glan-Thomson-Prisma linear polarisierte Parallelstrahl fällt auf die Probenoberfläche. Die Probe wurde mit Hydrokollag spannungsfrei auf einen Kupferblock geklebt, dessen Verbindung mit dem Heliumbadkryostaten die Abbildung 6.1 illustriert.



- 1 Fenster für Inzidenz $0^\circ, 30^\circ, 60^\circ, 90^\circ$
- 2 Probe
- 3 Vorratsbehälter mit flüssigem Helium
- 4 Wärmeschutzschilde
- 5 Vakuum

Abbildung 6.1 Einbau der Probe im Heliumbadkryostaten

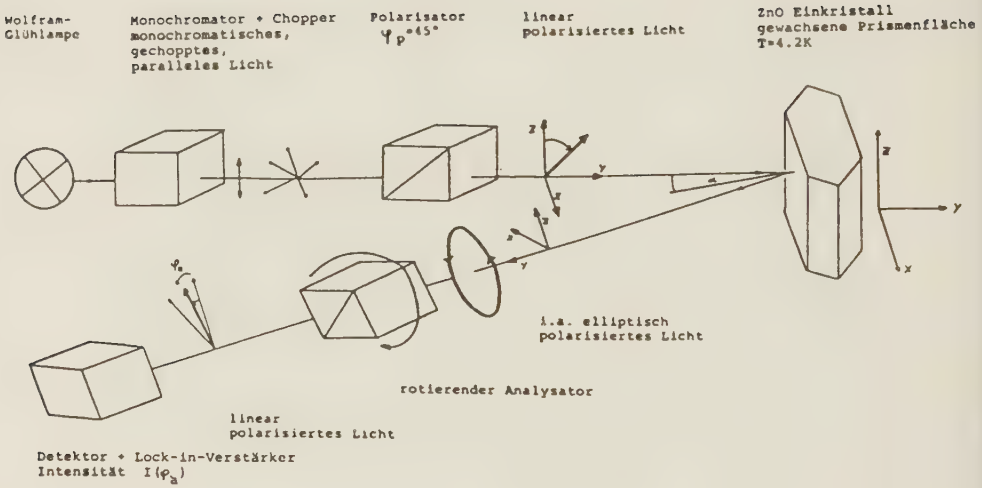


Abb. 6.2 Messanordnung Ellipsometrie
(PSA-Verfahren mit rotierendem Analysator)

Der von der Probe reflektierte Strahl passiert den rotierenden Analysator, ein zweites Glan-Thomson-Prisma. Ein Photomultiplier und ein Lock-in-Verstärker detektieren das Signal, das im nachfolgenden Rechner für jede Wellenlänge in Abhängigkeit von der Analysatorstellung aufgezeichnet wird.

Die Temperatur an der Probe betrug 4.2K. Die spektrale Auflösung liegt bei etwa 0.1nm. Der Einfallswinkel des Lichtes kann auf $1/10^\circ$ genau gemessen werden; die Winkelauflösung von Polarisator und Analysator beträgt etwa 1° .

6.2 Justierung

Die optische Achse der Anordnung ist durch die optische Achse des Monochromators bestimmt. Alle anderen optischen Komponenten wurden danach ausgerichtet.

Mit besonderer Sorgfalt wurden die Polarisatoren justiert. Stimmt die Durchlaßrichtung der Polarisatoren nicht mit den Hauptachsen der Rotationsmatrizen in 5.12 überein, treten in den Transmissionmatrizen der Polarisatoren Nichtdiagonalelemente auf, die in der Fourierzerlegung von 5.13 zu Beiträgen von höheren harmonischen Termen führen und damit eine natürliche optische Aktivität des reflektierenden Kristalls vortäuschen.

Sind die Stirnflächen der Polarisationen nicht orthogonal zur optischen Achse, ist die korrekte Beschreibung der Transmission der Polarisation durch eine 3x3-Matrix gegeben. Die y-Komponente der Polarisation führt zu einer Rampe im gemessenen Signal $I(\varphi_a)$, der das eigentliche,

harmonisch modulierte Signal überlagert ist. Die Fourierzerlegung nach 5.13 eines Signals, das aus Rampe + harmonisch moduliertem Anteil besteht, führt zu Konvergenzschwierigkeiten und erheblich veränderten Beiträgen der ersten harmonischen Glieder.

Bei schlechter Justierung können deshalb die ersten harmonischen Terme der Fourierzerlegung 5.13 nicht wie in 5.14 mit den Komponenten des Reflexionstensors des Kristalls verknüpft werden.

Um die c-Achse des Kristalls leichter parallel oder senkrecht zum Ausgangsspalt des Monochromators orientieren zu können, war der Badkryostat auf einem Untersatz montiert, der in der Höhe verstellbar, in x-Richtung verschiebbar und um die Mittelachse des Kryostaten (auf dieser Achse ist der Kristall befestigt) drehbar ist, außerdem kann der Kryostat in der x-z-Ebene gekippt werden, um die Neigung der Kristallfläche zu kompensieren.

Der absolute Winkel des Polarisators wurde durch das Reflexionsmaximum vom A,B- und C-Exziton für $\varphi_p \parallel c$ bzw. $\varphi_p \perp c$ grob bestimmt. Die Feinjustierung von Polarisator und Analysator folgt dem von D.E. Aspnes vorgeschlagenen Verfahren /6.1/, und wurde am isotropen Punkt, bei 392.8 nm /6.2/ durchgeführt.

Der Monochromator wurde bei jeder Messung anhand der Linien einer Quecksilberdampf Lampe geeicht /6.3/. Der Brechungsindex von Luft wurde mit 1.0002937 /6.4/ angenommen. Die Konversion von Vakuumwellenlänge zu Energie erfolgte mit einem Faktor 1239.852 eV/nm.

Der Brechungsindex des nicht resonanten Hintergrundes wurde für $\lambda = 360.0\text{nm}$ und $\lambda = 373.5\text{ nm}$ mit dem Vierzonenverfahren /6.6/ bei senkrechter Inzidenz bestimmt und mit den Werten in /6.7/ verglichen. Die Abweichung betrug weniger als 3%.

6.3 Probenpräparation

Um die Einflüsse der Oberflächenpräparation so gering wie möglich zu halten, wurden nur natürlich gewachsene 10 $\bar{1}0$ -Oberflächen verwendet. Die Kristalle wurden aus der Gasphase gezogen /6.8/. Sie wurden ca. 5min in konzentrierter Orthophosphorsäure geätzt, in Methanol gespült und mit Frigen getrocknet. Wenn im Reflexionsspektrum bei senkrechter Inzidenz das Minimum zwischen A- und B-Exziton auf etwa 20% absank und die reflektierte Intensität bei ω_{BL} und ω_{CL} fast verschwand, waren extrinsische Oberflächenschichten auszuschließen /6.4/ und die Kristalle konnten zur Messung verwendet werden.

6.4 Auswertung

Das mit dem Lock-in-Verstärker in Abhängigkeit von der Analysatorstellung gemessene Signal $I(\varphi_a)$ für eine feste Wellenlänge λ wird Fourier-transformiert /6.10/:

$$I_g(\varphi_a) = I_0/2 + a_1 \cos 2\varphi_a + b_1 \sin 2\varphi_a + \dots \quad 6.1$$

I_g gemessene Intensität

I_0 Gesamtintensität (Beitrag aller
Polarisationsrichtungen φ_a)

Aus der normierten Darstellung von 5.13

$$I_n = 1 + \alpha' \cos 2\varphi_a + \beta \sin 2\varphi_a \quad \alpha', \beta, \epsilon \quad (-1, +1) \quad 6.2$$

und der Annahme, daß das Reflexionsvermögen r_{ss} oder r_{pp} des nichtresonanten Hintergrundes gegeben ist durch

$$r_{ss} = \frac{\sqrt{\epsilon_\infty} \cos \alpha - 1}{\sqrt{\epsilon_\infty} \cos \alpha + 1} \quad r_{pp} = \frac{\sqrt{\epsilon_\infty} \cos \alpha - 1}{\sqrt{\epsilon_\infty} \cos \alpha + 1} \quad 6.3$$

α ist der Einfallswinkel der Lichtwelle

wird mit Hilfe von 5.14 das Reflexionsvermögen r_{ss} bzw. r_{pp} der resonanten Komponente sowie der Phasenverschiebung Δ berechnet. Für ϵ_∞ ist je nach Orientierung der Einfallsebene des Lichtes zur c-Achse der Wert von $\epsilon_{\parallel}$ oder $\epsilon_{\perp}$ einzusetzen, die aus /6.7/ entnommen wurden.

In den Diagrammen des folgenden Kapitels ist anstelle des gemessenen Quotienten $|r_{ss}/r_{pp}|$ immer der daraus berechnete resonante Anteil $|r_{ss}|^2$ oder $|r_{pp}|^2$ aufgetragen, um den Vergleich mit den bekannten (Intensitäts-) Reflexionsspektren zu erleichtern.

7. Experimentelle Ergebnisse

7.1 Einleitung

Nach dem PSA-Verfahren wurde phasenempfindlich das (komplexe) Reflexionsvermögen einer natürlich gewachsenen $10\bar{1}0$ -Fläche bestimmt. Der Einfallswinkel variierte zwischen 0° und 70° . Der Polarisatorwinkel betrug bei allen Messungen 45° .

Auf eine Interpretation der Messungen bei größeren Winkeln mußte verzichtet werden; in p-Polarisation verschwindet die reflektierte Intensität bei streifender Inzidenz fast völlig; in s-Polarisation erhöht sich der Anteil des Streulichtes durch die Rauigkeit der Oberfläche so stark, daß die Darstellung der Meßanordnung mit Jones-Matrizen (5.13) zweifelhaft ist. Die Fourierzerlegung des gemessenen Signals $I(\varphi_a)$ enthält für $\alpha \approx 80^\circ$ höhere harmonische Glieder, die in der selben Größenordnung liegen wie die ersten harmonischen Terme.

Die theoretischen Kurven wurden auf der Grundlage des Thomas-Hopfield-Modells berechnet (s. Kapitel 4). Kriterium für die Wahl der Fitparameter Dicke der exzitonenfreien Randschicht d und Dämpfung der Exzitonen Γ war eine möglichst gute Übereinstimmung an den sensiblen Punkten des Spektrums für den Parameter; für die exzitonenfreie Randschicht ist dies im Phasenspektrum die Schulter bei ω_L , für die Dämpfung die Ausbuchtung bei ω_T (vgl. Abschnitt 4.5.2); im Reflexionsspektrum ist das Anpassungskriterium für die Dämpfung die Übereinstimmung oberhalb der exzitonen Resonanz, für die exzitonenfreie Randschicht die Anpassung der steil abfallenden Flanke des Reflexionsmaximums.

Ein weiteres Anpassungskriterium war die Übereinstimmung des Parametersatzes für das A,B- und C-Exziton und das Herausbilden einer gemeinsamen Tendenz für die winkelabhängigen Messungen.

Die energetische Lage der Eigenfrequenzen sowie die Dämpfung sind in engen Grenzen probenspezifisch. Um die Fitparameter für die verschiedenen Winkel und Geometrien vergleichen zu können, sind alle hier gezeigten Meßergebnisse an einer Probe gewonnen worden. Die Tendenz ist für alle anderen gemessenen Proben gleich.

7.2 Isolierte Resonanz des C-Exzitons

Das resonante Verhalten des transversalen C-Exzitons kann an einer $10\bar{1}0$ -Fläche isoliert nur in der Geometrie der richtungsunabhängigen Wellenausbreitung in s-Polarisation untersucht werden.

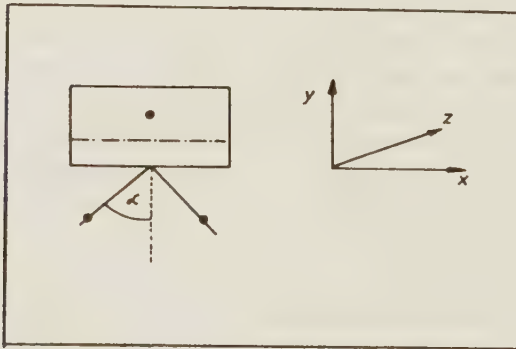


Abb. 7.1 Beobachtungsgeometrie für das C-Exziton
s-Polarisation

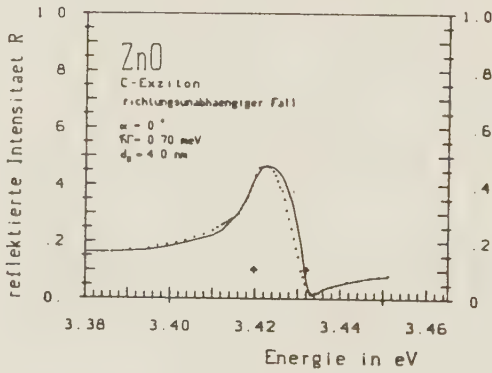
Für $\alpha=0^\circ$ (Abb. 7.2a) zeigt das Reflexionsvermögen ein ausgeprägtes Maximum bei der transversalen Eigenfrequenz, das zur longitudinalen Eigenfrequenz hin steil abfällt und bei ω_L fast verschwindet. Die experimentelle Kurve fällt zwischen ω_T und ω_L steiler ab.

Das Phasenspektrum beginnt bei einer Phasendifferenz von π unterhalb der exzitonischen Resonanz. Dieser Wert entspricht der Phasenverschiebung zwischen p- und s-Polarisation bei Reflexion an einem Dielektrikum. Knapp unterhalb von ω_T fällt die Phasendifferenz erst langsam, oberhalb von ω_T dann sehr steil ab bis sie oberhalb von ω_L den Wert $-\pi$ erreicht. Bei ω_L zeigt sich eine leichte Schulter in Experiment und Theorie, die mit der exzitonfreien Randschicht verknüpft ist. Das Modell gibt den Verlauf des Phasenspektrum sehr genau wieder. Eine besser Anpassung des Reflexionsspektrums ist, wie Lagois gezeigt hat /7.1/, mit diesem einfachen Modell nicht möglich.

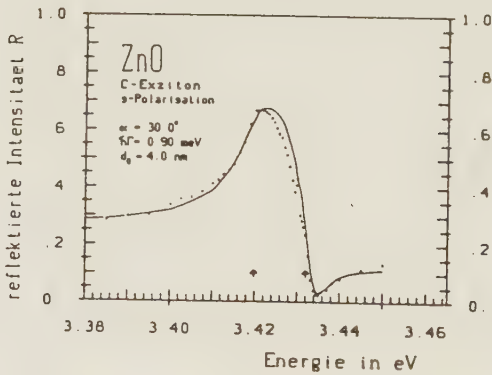
Für $\alpha = 30^\circ$ (Abb. 7.2b) zeigt sich kein wesentlich verschiedener Verlauf der Spektren im Vergleich zur senkrechten Inzidenz. Die Maxwell-Randbedingungen bewirken einen Anstieg der reflektierten Intensität für die s-Polarisation.

Das Phasenspektrum hat sich geringfügig zu kleineren Energien hin verschoben, deswegen wurde die Dämpfung leicht erhöht (von 0.7 meV auf 0.9 meV). Der Verlauf der Kurve insgesamt verändert sich nicht.

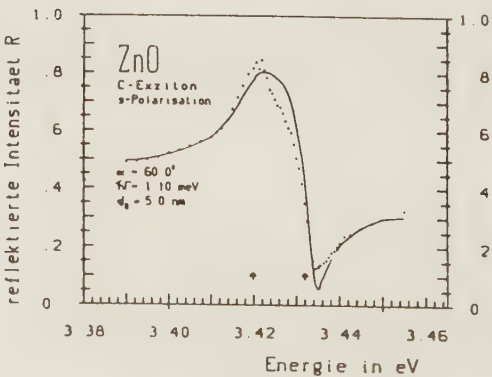
Für $\alpha = 60^\circ$ (Abb. 7.2c) hat sich im Phasenspektrum das Energieintervall verbreitert, in dem der Phasensprung auftritt. Bei ω_L entsteht ein Einbruch im Verlauf der Phasenkurve, der im Experiment schwächer ausgeprägt beobachtet wurde. Es folgt ein Zwischenmaximum, das sich mit zunehmendem Einfallswinkel verstärkt. Nach steilem Abfall nimmt die Phasendifferenz den Wert $-\pi$ an.



7.2a



7.2b



7.2c

Abb. 7.2 a-c reflektierte Intensität

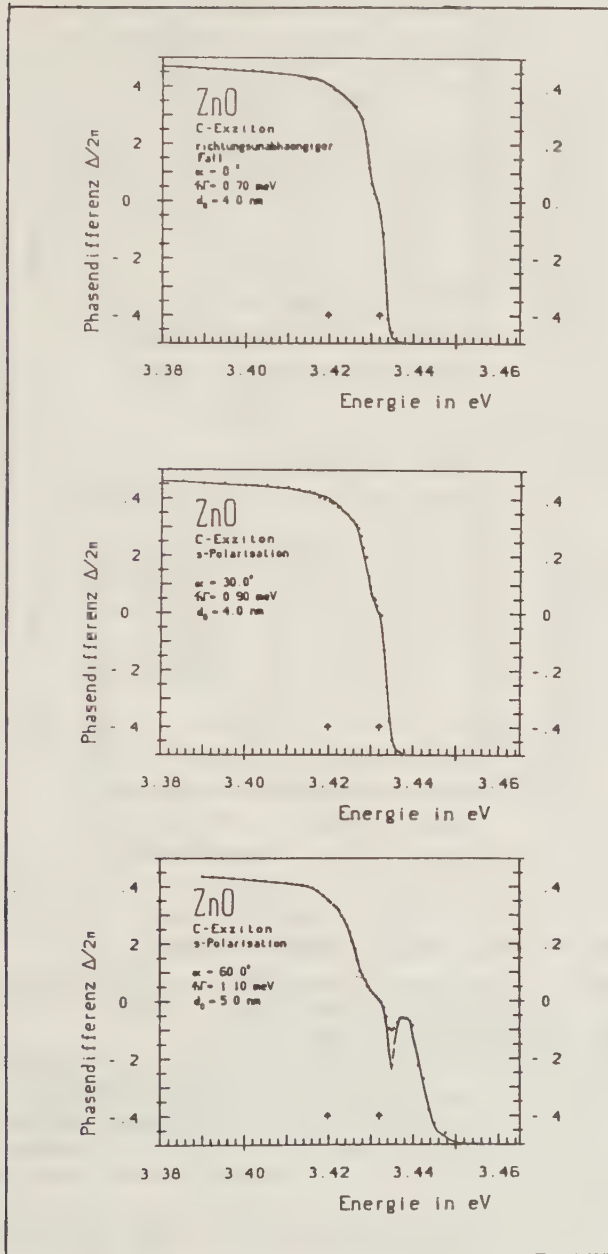


Abb. 7.2 a-c Phasendifferenz

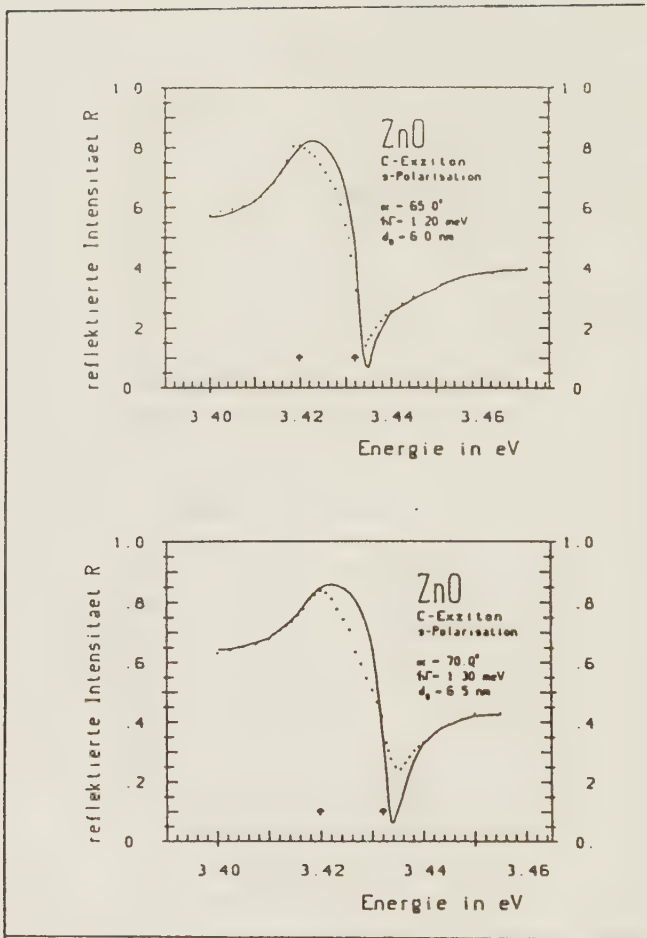


Abb. 7.2 d,e reflektierte Intensität

Abb. 7.2 Spektrale Abhängigkeit der reflektierten Intensität R und der Phasendifferenz Δ für verschiedene Einfallswinkel α des Lichts;
 Δ ist die Phasendifferenz zwischen der senkrecht und der parallel zur c-Achse polarisierten Komponente der elektrischen Feldamplitude der reflektierten Welle;
für $\alpha \neq 0^\circ$ ist Δ gleichzeitig die Phasendifferenz zwischen der parallel und der senkrecht zur Einfallsebene polarisierten Komponente der elektrischen Feldamplitude der reflektierten Welle;
die durchgezogenen Linien wurden nach dem Thomas-Hopfield-Modell berechnet, die Punkte stellen die Messergebnisse dar;
C-Exziton, richtungsunabhängiger Fall, s-Polarisation

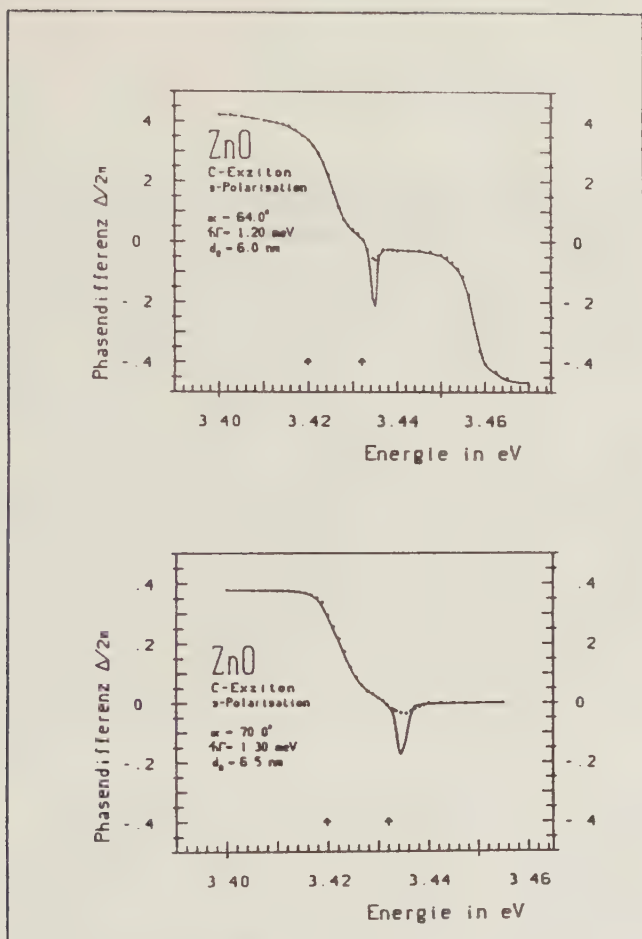


Abb. 7.2 d,e Phasendifferenz

Bei $\alpha = 64^\circ$ (Abb. 7.2d) befinden wir uns schon in der Nähe des Brewsterwinkels. Die reflektierte Intensität hat sich insgesamt erhöht, im Reflexionsminimum bei ω_L ist die gemessene Intensität größer als im Modell, das flachere Minimum läßt sich durch keinen Parametersatz genau anpassen.

Der Verlauf des Phasenspektrums hat sich jedoch drastisch verändert. Der Abfall der Phasendifferenz setzt bei kleineren Energien ein, die Schulter bei ω_L ist stärker ausgeprägt, die Anpassung gelingt nur mit einer größeren exzitonenfreien Randschicht von 8nm anstelle von 4nm. Bei ω_L zeigt die theoretische Kurve einen scharfen Zusatzpeak, der im Experiment weit weniger ausgeprägt ist. Dem flacheren Verlauf des Zusatzpeaks im experimentellen Phasenspektrum entspricht die höhere gemessene Intensität im Reflexionsminimum bei ω_L .

Der Zusatzpeak im Phasenspektrum entsteht bei einer Frequenz, bei der der Realteil des Brechungsindex klein ist und der Imaginärteil überwiegt. Die optischen Eigenschaften sind in diesem Bereich mit Metallen vergleichbar. Anschließend an den Zusatzpeak entsteht ein Plateau, das mit wachsender Dämpfung und zunehmendem Einfallswinkel breiter wird. Der Wert der Phasendifferenz im Sattel beträgt Null, d.h. die Phasendifferenz zwischen s- und p-Polarisation ist verschwunden, wir befinden uns im Gebiet des normalen Brewstereffekts. Mit steigender Energie wächst der Brechungsindex und damit der Brewsterwinkel, der Frequenzbereich, in dem der normale Brewstereffekt geschieht, wird verlassen. Das Plateau mündet in eine steile Flanke, die gegen den Wert $-\pi$ konvergiert.

Für $\alpha = 70^\circ$ (Abb. 7.2e) hat sich die reflektierte Intensität weiter erhöht. Der Hub des Reflexionsmaximum ist relativ zur Reflexion des Hintergrundes geringer geworden. Das Reflexionsminimum bei ω_L ist im Modell tiefer als für die gemessene Intensität. Die abfallende Flanke zwischen ω_T und ω_L verläuft für die gemessenen Werte steiler als für die berechneten. Die Struktur des Reflexionsspektrums bleibt insgesamt erhalten.

Das Phasenspektrum des Modells zeigt bei ω_L wieder einen Zusatzpeak, der gemessene Peak verläuft flacher als in der Theorie und ist breiter als bei $\alpha = 64^\circ$; deshalb wurde die Dämpfung auf 1.3 meV erhöht; oberhalb des Peak verschwindet die Phasendifferenz, wir befinden uns im Gebiet des normalen Brewstereffekts, das für diesen Einfallswinkel nicht mehr verlassen wird.

7.3 Gekoppelte Resonanz des A,B-Exzitons

Die Resonanz des A,B-Exzitons kann an einer $10\bar{1}0$ -Fläche in zwei Geometrien isoliert beobachtet werden:

- a) für den Fall der richtungsunabhängigen Wellenausbreitung

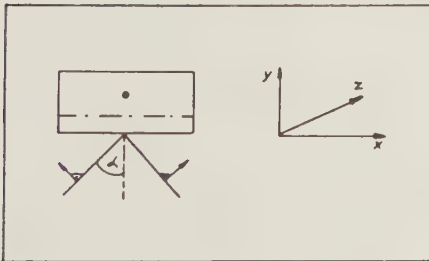


Abb. 7.3
Beobachtungsgeometrie
für das A,B-Exziton
p-Polarisation
richtungsunabhängiger Fall

b) und für die richtungsabhängige Wellenausbreitung

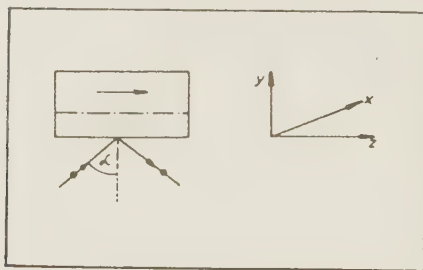


Abb. 7.4
Beobachtungsgeometrie
für das A,B-Exziton
s-Polarisation
richtungsabhängiger Fall

Im Fall b) tragen zur Polarisation nur die transversalen Exzitonen bei, im Fall a) können mit zunehmendem Einfallswinkel auch longitudinale Exzitonen angeregt werden. Der effektive Brechungsindex unterscheidet sich (s. Abschnitt 4.4.1 und 4.4.2) durch die Zahl der Brechungsindizes und die Art der Maxwell-Randbedingungen.

Für $\alpha = 0^\circ$ (Abb. 7.5a, 7.6a) trägt das longitudinale Exziton nicht zum Brechungsindex bei, die reflektierte Intensität ist für s- und p-Polarisation gleich, die Phasenspektren unterscheiden sich durch das Vorzeichen.

Die reflektierte Intensität zeigt die ausgeprägte Doppelstruktur des A,B-Exzitons, ein niedrigeres Maximum bei ω_{AT} , ein Minimum bei ω_{AL} , ein höheres breiteres Maximum bei ω_{BT} und ein tiefes Minimum bei ω_{BL} . Das Thomas-Hopfield-Modell gibt die Struktur des Experiments richtig wieder. Allerdings verläuft, wie schon beim C-Exziton, die gemessene Flanke zwischen ω_{BT} und ω_{BL} steiler als im Modell. Sowohl das Maximum als auch das Minimum des A-Exziton sind im Experiment stärker ausgebildet als im Modell. Auch durch tiefenabhängige Exzitoneigenfrequenzen /7.1/ konnte Lagois dafür keine bessere Anpassung erreichen.

Die Struktur des Phasenspektrums wird durch das Modell richtig wiedergegeben. Wie für das C-Exziton erfährt die Phasendifferenz bei ω_{BL} einen Phasensprung von $+2\pi$ für die p-Polarisation und -2π für die s-Polarisation. Das B-Exziton ist im Phasenspektrum die dominierende Resonanzstelle. Das A-Exziton bewirkt einen Einbruch, der schon in der ansteigenden bzw. abfallenden Flanke des B-Exzitons liegt. Ähnlich wie im Reflexionsspektrum ist im Experiment die Phasenverschiebung durch das A-Exziton stärker ausgeprägt als im Modell. Wegen der Störung durch das B-Exziton entsteht bei ω_{AL} kein Phasensprung von 2π , den wir für eine voll ausgebildete Resonanz erwarten würden. Dies entspricht auch dem Verlauf der Dispersionsrelation. Anstelle der 4 Polaritonmoden für zwei isolierte Resonanzstellen existieren nur drei Moden für zwei gekoppelte Resonanzstellen. Der Brechungsindexbeitrag zwischen ω_{AL} und ω_{BL} wird durch das B-Exziton bestimmt, die Phase koppelt von daher an die Phasenlage des B-Exzitons an.

Für $\alpha = 30^\circ$ (Abb. 7.5b, 7.6b) wirken sich im Reflexionsspektrum die unterschiedlichen Randbedingungen für s- und p-Polarisation aus. Die reflektierte Intensität für s-Polarisation steigt im Vergleich zu $\alpha = 0^\circ$, für p-Polarisation sinkt sie. Die Struktur des Spektrums bleibt erhalten.

Das Phasenspektrum ist bis auf das Vorzeichen für s- und p-Polarisation gleich. Es verschiebt sich geringfügig zu kleineren Energien hin, die Dämpfung wurde deshalb leicht erhöht, die Struktur der Kurve hat sich nicht verändert.

Für $\alpha = 60^\circ$ (Abb. 7.5c, 7.6c) treten deutliche Unterschiede im Reflexionsspektrum für beide Polarisierungen auf. Die reflektierte Intensität verschwindet für die p-Polarisation oberhalb der exzitonischen Resonanz fast völlig, unterhalb der Resonanz ist sie klein, das Maximum des A-Exzitons hat mehr an Intensität eingebüßt als das B-Exziton, die Doppelstruktur bleibt erhalten. Für die s-Polarisation steigt die reflektierte Intensität, das Minimum bei ω_{BL} bleibt im Modell stärker ausgeprägt als im Experiment. Die Doppelstruktur bleibt erhalten.

Das Phasenspektrum zeigt den gewohnten Verlauf bis auf das Gebiet um ω_{BL} . Dort hat sich die Schulter verstärkt, bei ω_{BL} ist ein Zusatzpeak entstanden, gefolgt von einem schmalen Sattel. Anschließend steigt bzw. fällt das Phasenspektrum und mündet in den Wert $+\pi$. Zusatzpeak und Sattel reagieren empfindlich auf Γ und d. Die Dämpfung wurde auf 1.1 meV erhöht, die exzitonenfremde Randschicht auf 6nm ausgedehnt.

Für $\alpha = 65^\circ$ (Abb. 7.5d, 7.6d) haben sich die Reflexionsspektren im Vergleich zu $\alpha = 60^\circ$ wenig verändert.

Das Phasenspektrum zeigt für $\omega \leq \omega_{BT}$ den gewohnten Verlauf: unterhalb der Resonanzstellen beträgt der Wert der Phasendifferenz $\Delta + \pi$ für p-Polarisation bzw. $-\pi$ für s-Polarisation; im Resonanzbereich des A-Exzitons entsteht ein Einbruch im für p-Polarisation monoton steigenden bzw. für s-Polarisation monoton fallenden Verlauf der Phasendifferenz.

Oberhalb von ω_{BT} hat sich das Phasenspektrum verändert: die Schulter zwischen ω_{BT} und ω_{BL} hat sich verstärkt, die Phasendifferenz Δ nimmt oberhalb der Resonanz den Wert Null an für alle Winkel $\alpha \geq 65^\circ$.

Das Verschwinden der Phasendifferenz ist für p-Polarisation (d.h. die exzitonische Resonanz ist nur durch die p-polarisierte Komponente der einfallenden Lichtwelle anregbar) eine Folge des "normalen" Brewstereffekts. Das Verschwinden der Phasendifferenz auch für s-Polarisation ist dadurch nicht erklärbar

und muss deshalb mit dem exzitonischen Brewstereffekt in Verbindung gebracht werden. Aus den Messungen allein kann das Auftreten des exzitonischen Brewstereffekts nicht zwingend gefolgert werden.

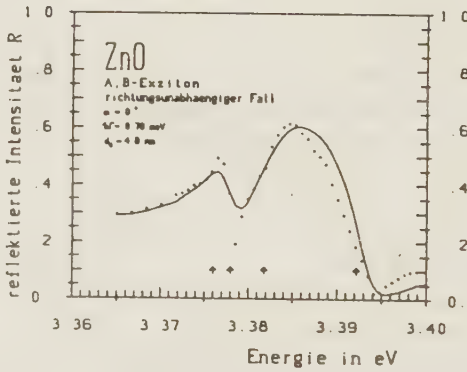
Für $\alpha = 70^\circ$ (Abb. 7.5e, 7.6e) ist die Veränderung in den Reflexionsspektren gering.

Im Phasenspektrum liegt nun das A-Exziton in der steilen Flanke des B-Exzitons, oberhalb des Zusatzpeaks bleibt die Phasendifferenz Null, das Brewstergebiet wird nicht verlassen.

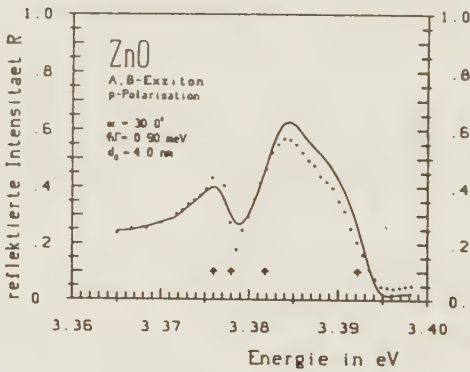
Der Unterschied zwischen s- und p-Polarisation in den Phasenspektren für verschiedene Einfallswinkel liegt innerhalb der Meßgenauigkeit. Durch den hohen Brechungsindex in der Resonanz sind die im Medium erreichten Winkel zu klein um einen nennenswerten Beitrag des longitudinalen Exzitons zum Brechungsindex zu bewirken. Dieser Befund stimmt mit den Ergebnissen von Rosenzweig an CdS /7.7/ überein.

Messungen bei streifender Inzidenz $\alpha = 85^\circ$ ergaben für die s-Polarisation eine qualitative Übereinstimmung mit dem Modell. Bei diesem Winkel ist die Brewsterbedingung im ganzen Frequenzbereich erfüllt, es tritt kein Phasensprung auf. Für eine quantitative Interpretation waren die Meßergebnisse (s.7.1) zu schlecht.

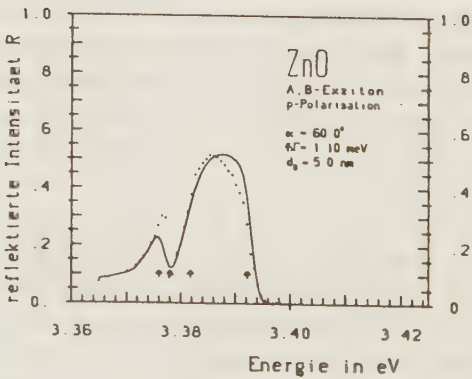
Die Tabelle 7.1 gibt einen Überblick über die zur Anpassung verwendeten Fitparameter f' und d. Mit wachsendem Einfallswinkel wird eine höhere Dämpfung und eine größere exziton-freie Randschicht benötigt. Die Abhängigkeit des Fitparameter f' vom Winkel ist stärker als der Einfluß der Kristallsymmetrie oder die Art der Resonanzstelle.



7.5a



7.5b



7.5c

Abb. 7.5 a-c reflektierte Intensität

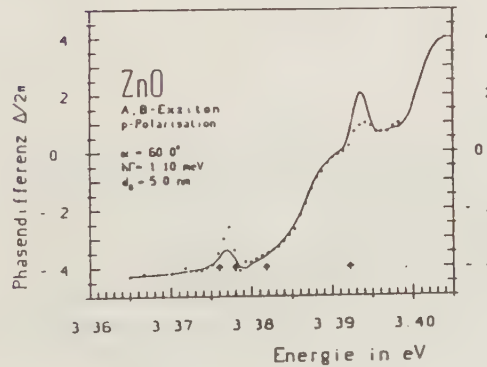
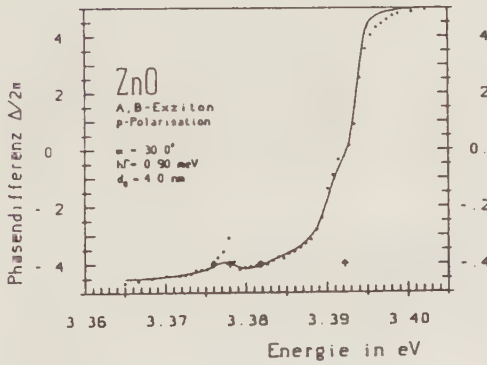
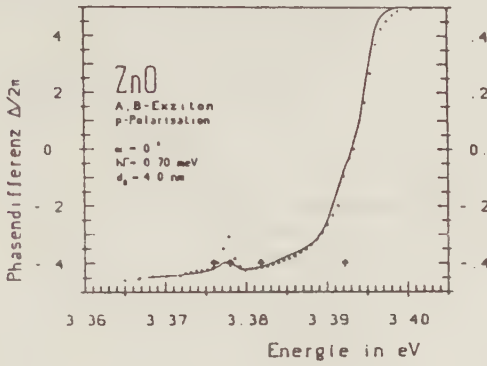


Abb. 7.5 a-c Phasendifferenz

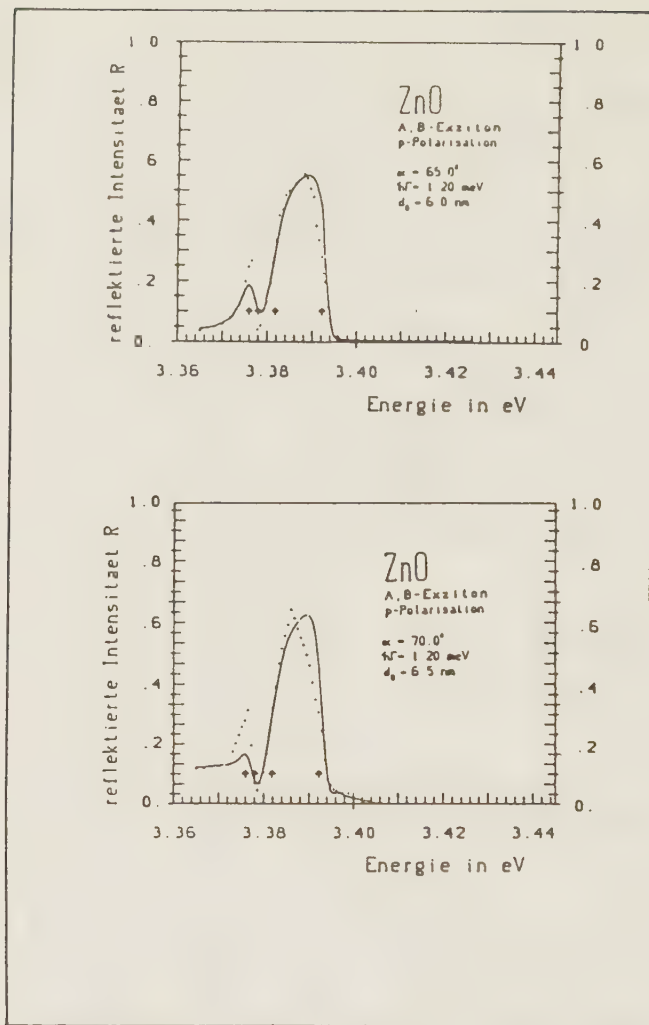


Abb. 7.5 d,e reflektierte Intensität

Abb. 7.5 Spektrale Abhängigkeit der reflektierten Intensität R und der Phasendifferenz Δ für verschiedene Einfallswinkel α des Lichts; Δ ist die Phasendifferenz zwischen der senkrecht und der parallel zur c -Achse polarisierten Komponente der elektrischen Feldamplitude der reflektierten Welle; für $\alpha \neq 0^\circ$ ist Δ gleichzeitig die Phasendifferenz zwischen der parallel und der senkrecht zur Einfallsebene polarisierten Komponente der elektrischen Feldamplitude der reflektierten Welle; die durchgezogenen Linien wurden nach dem Thomas-Hopfield-Modell berechnet, die Punkte stellen die Messergebnisse dar, A,B-Exziton, richtungsunabhängiger Fall, p-Polarisation

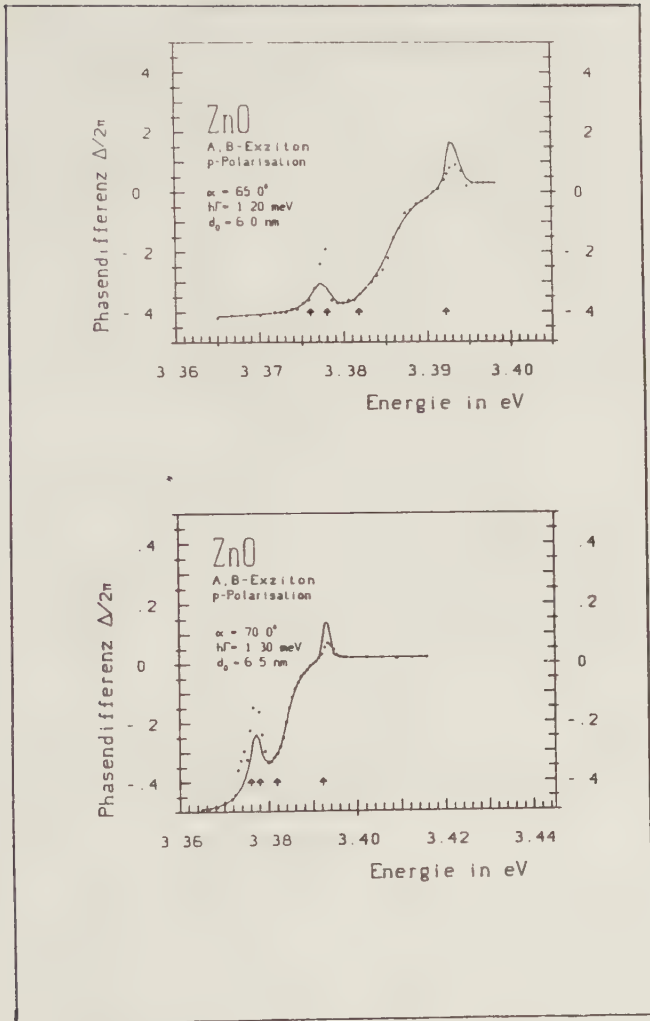


Abb. 7.5 d,e Phasendifferenz

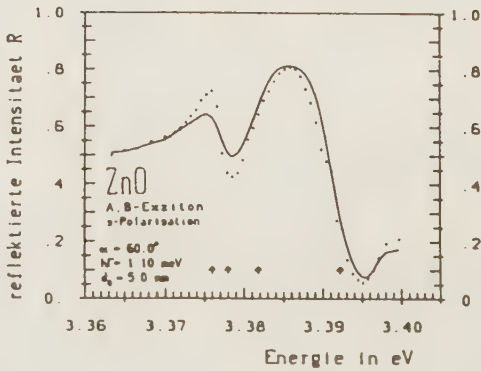
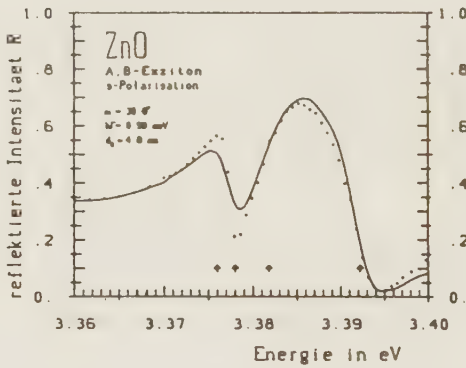
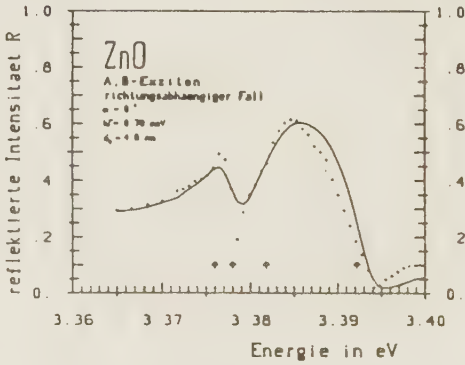
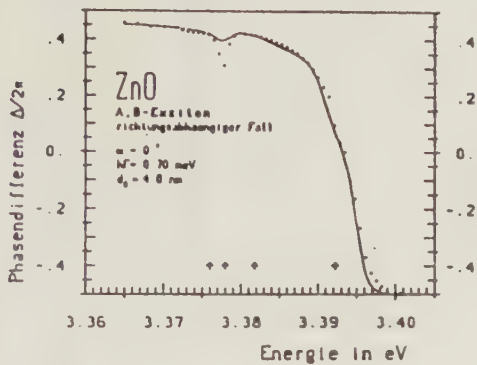
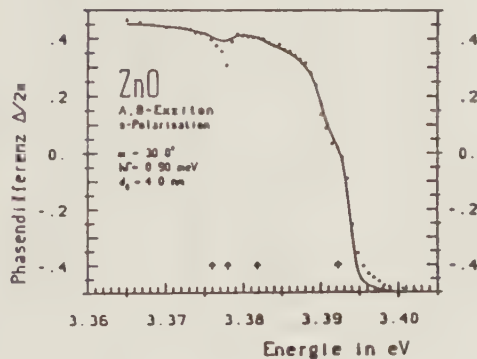


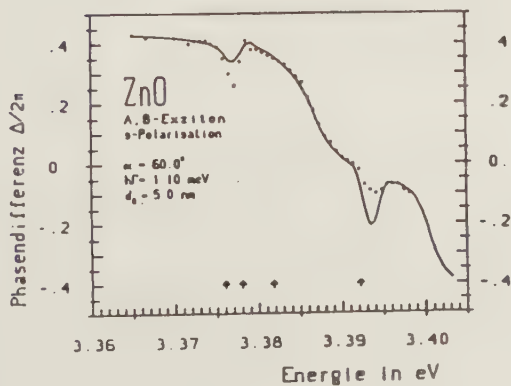
Abb. 7.6 a-c reflektierte Intensität



7.6a



7.6b



7.6c

Abb. 7.6 a-c Phasendifferenz

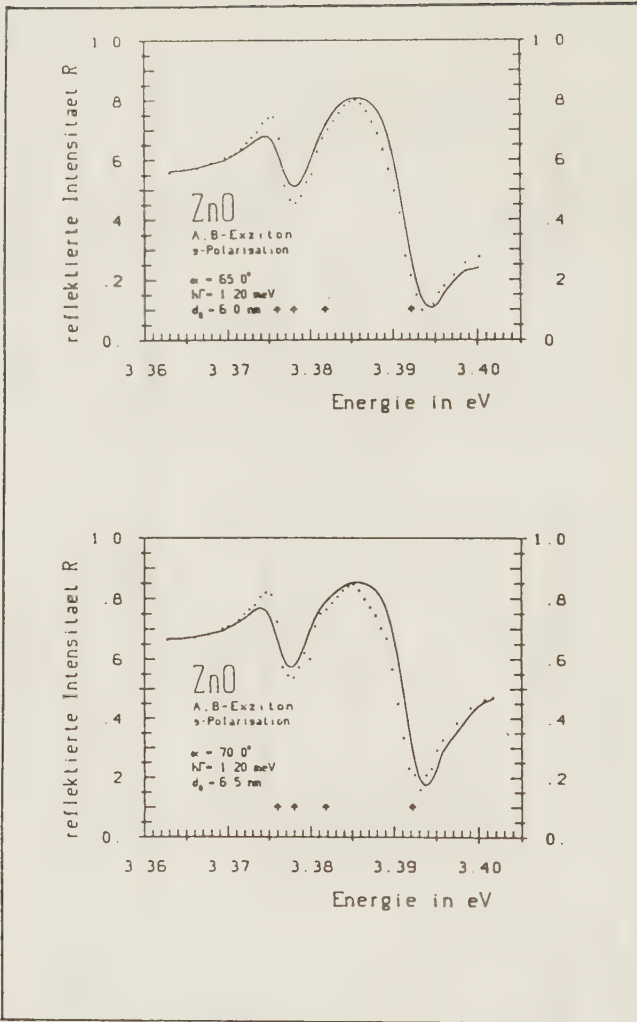
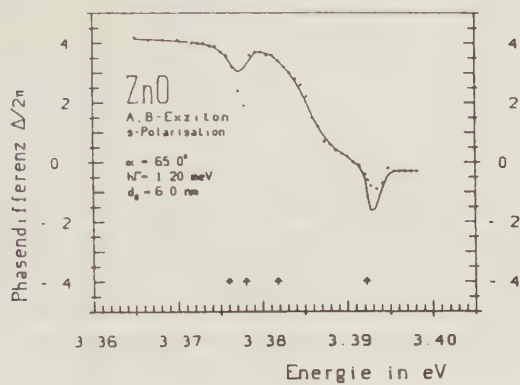
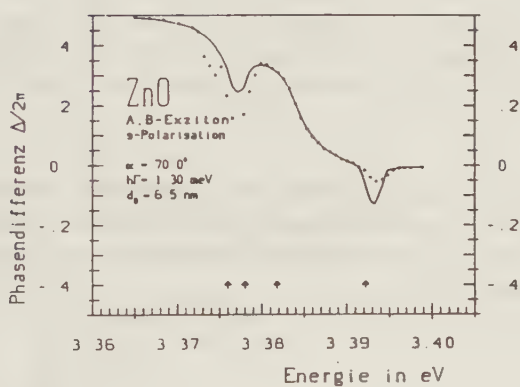


Abb. 7.6 d,e reflektierte Intensität

Abb. 7.6 Spektrale Abhängigkeit der reflektierten Intensität R und der Phasendifferenz Δ für verschiedene Einfallswinkel α des Lichts;
 Δ ist die Phasendifferenz zwischen der parallel und der senkrecht zur c-Achse polarisierten Komponente der elektrischen Feldamplitude der reflektierten Welle;
für $\alpha \neq 0^\circ$ ist Δ gleichzeitig die Phasendifferenz zwischen der parallel und der senkrecht zur Einfallsebene polarisierten Komponente der elektrischen Feldamplitude der reflektierten Welle;
die durchgezogenen Linien wurden nach dem Thomas-Hopfield-Modell berechnet, die Punkte stellen die Messergebnisse dar;
A,B-Exziton, richtungsabhängiger Fall, s-Polarisation



7.6d



7.6e

Abb. 7.6 d,e Phasendifferenz

	C-Exziton richtungsunabhängig s-Polarisation		A,B-Exziton richtungsunabhängig p-Polarisation		A,B-Exziton richtungsabhängig s-Polarisation	
	d	$\hbar\Gamma$	d	$\hbar\Gamma$	d	$\hbar\Gamma$
0°	4 nm	0.7meV	4nm	0.7 meV	4nm	0.7meV
30°	4nm	0.9meV	4nm	0,9 meV	4nm	0.9meV
60°	5 nm	1.1meV	5nm	1.1 meV	5nm	1.1meV
65(4)°	6 nm	1.2meV	6nm	1.2 meV	6nm	1.2meV
70°	6.5nm	1.3meV	6.5nm	1.3 meV	6.5nm	1.3mev

Tab. 7.1: Die für die Anpassung der gemessenen Spektren an das Thomas-Hopfield-Modell verwendeten Fitparameter Dicke der exzitonenfreien Randschicht d und Exzitonen-dämpfung $\hbar\Gamma$

7.4 Sonstige Messungen

Mit steigender Temperatur verbreitert sich die resonanzartige Struktur des Reflexionsspektrums, das Reflexionsminimum bei den longitudinalen Eigenfrequenzen wird flacher.

Im Phasenspektrum bewirkt eine Erhöhung der Temperatur eine Verbreiterung des Frequenzbereiches, in dem der Phasensprung auftritt. Bei 77K ist die Dämpfung bereits so groß, daß kein Phasensprung mehr auftritt. Die Abbildung 7.7 zeigt das Phasenspektrum des C-Exzitons, gemessen an einer $10\bar{1}0$ -Fläche bei senkrechter Inzidenz.

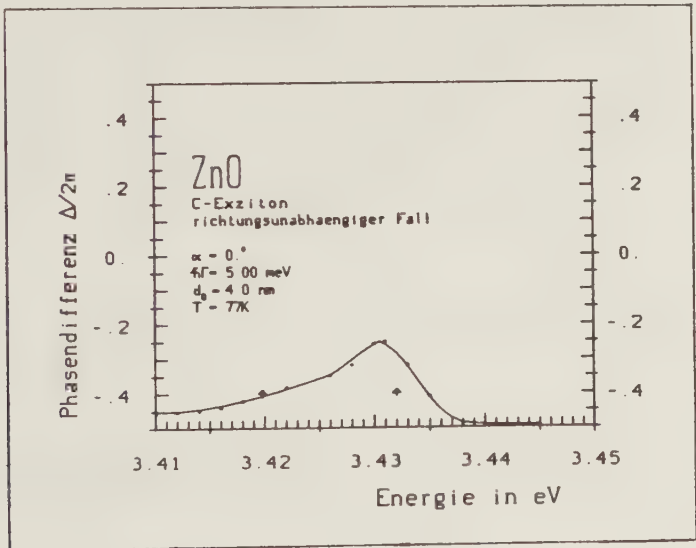


Abb. 7.7 Phasenspektrum des C-Exzitons bei senkrechter Inzidenz für $T=77\text{K}$, die durchgezogene Kurve ist berechnet mit $\hbar\Gamma = 5.0\text{meV}$, die Punkte stellen die Meßergebnisse dar.

Die Beiträge k-linearer Terme zum A-Exziton konnten ebenfalls beobachtet werden.

k-lineare Terme im dielektrischen Tensor bedeuten eine natürliche optische Aktivität, die für die Kristallklasse 6mm nicht mit einer Drehung der Polarisationssebene verknüpft ist /3.1/, /7.4/, /7.5/.

Das Experiment wurde an einer $10\bar{1}0$ -Fläche bei einem Einfallswinkel von 30° ($T=4K$) in der richtungsunabhängigen Geometrie durchgeführt.

Orientiert man den Polarisator senkrecht zur c-Achse und den Analysator parallel dazu, beobachtet man i.a. Auslöschung, bei der longitudinalen Eigenfrequenz des A-Exzitons beobachtet man einen kleinen Peak, der etwa 30mal kleiner ist als die Resonanz des A-Exzitons, die man bei Parallelstellung vom Polarisator und Analysator senkrecht zur c-Achse beobachtet. Dieser Peak wird dem Γ_1 (A)-Übergang zugeordnet, der sonst nur in Emission gemessen wurde.

Ein Übergang des Γ_5 (C)-Exzitons konnte nicht sicher identifiziert werden, seine Oszillatorstärke ist kleiner (s. 3.4.1) als die des A-Exzitons.

Natürliche optische Aktivität wurde auch für das $B_{n=1}$ -Exziton in CdS /7.2/, /7.3/ und β -AgI /7.6/ nachgewiesen.

8. Diskussion

8.1 Fitparameter

Obwohl im Vordergrund der vorliegenden Arbeit nicht die Materialcharakterisierung von ZnO , sondern das Verständnis exzitoner Polaritonen steht, muß noch einmal auf die Bedeutung der Fitparameter eingegangen werden.

Alle Parameter, die in das phänomenologische Oszillatormodell (s. Abschnitt 2.4) eingehen wie die Exzitonenmasse M , die Dämpfung Γ , die Dicke d der exzitonenfreien Randschicht, die Eigenfrequenzen ω_T und ω_L , die Hintergrunds-DK ϵ_∞ und die zusätzlichen Randbedingungen ABC, sind miteinander verknüpft und können nur unter Beachtung gewisser, für das Experiment charakteristischer "Spielregeln" als Anpaßparameter gewählt werden.

Eine Erhöhung der Masse M beispielsweise reduziert den Exzitonenradius und den Einfluß der räumlichen Dispersion. Darüber wirkt sie auf die Größe d der exzitonenfreien Randschicht und die Notwendigkeit bzw. Art der zusätzlichen Randbedingungen.

Eine zentrale Bedeutung kommt der dielektrischen Funktion ϵ_∞ des nichtresonanten Hintergrundes zu, die eine Art "Maßstabsfaktor" für die Polaritoneigenschaften darstellt.

Da die obengenannten Parameter nicht unabhängig voneinander aus Reflexionsexperimenten bestimmt werden können, versucht man einige der Werte aus anderen Experimenten zu entnehmen, die auf diese Parameter in anderer Weise reagieren.

a) Exzitonenmasse

Reflexionsexperimente (s. Abschnitt 4.5.2) sind ziemlich unempfindlich auf Variation der Exzitonenmasse M , die Werte sind deshalb aus Intraband-Magneto-Reflexions-experimenten /8.1/ übernommen.

b) Hintergrunds-DK

Der Wert der Hintergrunds-DK ϵ_{∞} wurde nach dem Vierzonen-verfahren /5.1/ gemessen und mit der Literatur /6.2/ verglichen.

c) Zusätzliche Randbedingungen

Die Pekar-Randbedingungen wurden gewählt, weil sie für Reflexionsmessungen im allgemeinen die besten Anpassungen liefern und mikroskopische Ansätze keine Präferenz für andere Randbedingungen ergeben, ein "experimentum crucis" für die ABC's ist als Reflexionsexperiment nicht vorstellbar.

d) Eigenfrequenzen, Dämpfung

Die Eigenfrequenzen ω_T und ω_L sowie die Dämpfung Γ wurden aus der Anpassung des Reflexionsspektrums für senkrechte Inzidenz bestimmt.

Da die Dämpfung nur um $\omega = \omega_L$ einen wesentlichen Einfluß auf das Reflexions- und Phasenspektrum ausübt, konnte sie als frequenzunabhängig angenommen werden. Hinweise auf eine k -Abhängigkeit der Dämpfung ergaben sich aus der Anpassung der Phasenspektren nicht.

Die phänomenologische Dämpfung Γ des Oszillatormodells ist durch die Realstruktur (Fehlstellen) des Kristalls bestimmt, sie kann deshalb nicht mit der natürlichen Linienbreite des Exzitons im idealen Kristall verknüpft werden.

e) Depolarisation

In der Umgebung von ω_L und insgesamt für größere Einfallswinkel treten spürbare Beiträge von unpolarisierter Strahlung auf. Die Depolarisation bei ω_L führen Petsov et al. /8.2/ auf elastische Streuung an Punktdefekten zurück, deren Konzentration an der Oberfläche am größten ist. Ein Zusammenhang zwischen dieser "Rayleigh-Streuung" und den Einfallswinkel ist bisher nicht bekannt.

Ein steiles Anwachsen der Depolarisation des reflektierten Strahles mit wachsendem Einfallswinkel fast unabhängig von der Polarisationsrichtung des einlaufenden Strahles zeigen Rechnungen von Tsang /8.3/ für Dielektrika mit rauher Oberfläche.

Beiträge von depolarisiertem Licht im reflektierten Strahl bewirken einen nicht modulierten Untergrund im PSA-Signal, der eine erhöhte reflektierte Intensität vortäuscht. Eine größere Dämpfung der Exzitonen führt gerade auch zu einer Anhebung der reflektierten Intensität außerhalb der Resonanz. Da die angepaßten Werte der Dämpfung nur vom Winkel und nicht von der Kristallsymmetrie, dem Exzitonentyp oder der Polarisation abhängen, ist die Verknüpfung mit einem exzitonunenabhängigem Mechanismus naheliegend. Wir können also davon ausgehen, daß das Anwachsen des Fitparameters Γ mit steigendem Winkel aus keiner intrinsischen Eigenschaft der exzitonischen Polaritonen herrührt.

8.2 Vergleich mit anderen Materialien

Eine Besonderheit von ZnO ist die im Vergleich zu CdS, CdSe oder ZnTe dürftige Übereinstimmung der experimentellen mit den theoretischen Reflexionsspektren; die nach dem Thomas-Hopfield-Modell mit räumlicher Dispersion und exzitonenfreier Randschicht berechnet werden.

Eine bessere Übereinstimmung von Theorie und Experiment konnte erst Lagois /8.5/ mit der Einführung von schicht-dickenabhängigen exzitonischen Eigenfrequenzen erzielen. Die Tiefenabhängigkeit der Eigenfrequenzen ist eine Folge des Einflusses des regulären Oberflächenpotentials auf das Exziton /8.6/, /8.7/. Der Vergleich wurde von Lagois für verschiedene Substanzen bei senkrechter Inzidenz durchgeführt. Über eine Winkelabhängigkeit der Parameter in diesem Modell ist nicht bekannt.

Da die Dicke der exzitonenfreien Randschicht unmittelbar mit dem repulsiven Oberflächenpotential verknüpft ist, die angepaßten Schichtdicken aber unabhängig vom Exzitonentyp und Kristallsymmetrie mit dem Einfallswinkel des Lichts steigen, liegt es nahe, eine Winkelabhängigkeit des Oberflächenpotentials zu vermuten.

Für Untersuchungen des Einflusses elektrischer Felder an der Oberfläche auf die Eigenschaften exzitonischer Polaritonen ist ZnO jedoch wegen des kleinen Exzitonradius und der geringen Hintergrunds-DK keine günstige Modellschicht. Elektrische Felder verursachen einen

Stark-Shift der Exzitoneneigenenergien, der für Substanzen mit kleinen Exzitonenebindungsenergien und damit großen Exzitonennradien wie GaAs /8.8/ deutlich meßbare Effekte liefert.

Aufschlußreich ist der Vergleich von Reflexions- und Phasenspektren für verschiedene Substanzen. Phasenempfindliche Reflexionsmessungen bei schräger Inzidenz wurden durchgeführt an hexagonalen CdS /8.9/, /8.12/, /8.13/ und CdSe /8.11/, kubischen ZnTe /8.10/, /8.13/ und ZnSe /8.11/, sowie an orthorhombischen ZnP_2 /8.13/ und AgI /8.14/.

Trotz beträchtlicher Unterschiede in der Struktur der Reflexionsspektren der obengenannten Substanzen für senkrechte Inzidenz wie unterschiedliche Höhe des Reflexionsmaximums, zusätzliche Spikes in der Umgebung von ω_L , Schultern an der steilabfallenden Flanke zwischen ω_T und ω_L , unterscheiden sich die Phasenspektren (mit Ausnahme der kubischen Kristalle) fast nicht. Im Phasenspektrum dominiert die Phasenverschiebung durch den resonanten exzitonischen Oszillator über alle anderen Unterschiede wie Kristallstruktur oder verschiedene Exzitoneneparameter.

Für Einfallswinkel unter etwa 60° reagiert das Reflexionsspektrum wesentlich empfindlicher auf Veränderungen von exzitonischen Parametern als das Phasenspektrum (s. z.B., Abschnitt 4.5.2). Erst wenn der Einfallswinkel des Lichtes in die Nähe des Brewsterwinkels rückt, und damit der polaritonische Oszillator fast ausgeschaltet ist, zeigen sich im Phasenspektrum Einflüsse der exzitonischen Parameter und der Kristallstruktur. In diesem sensiblen Winkelbereich sind aus der Literatur nur Messungen an AgI /8.14/ bekannt. Die Struktur des Phasenspektrums

in /8.14/ stimmt qualitativ mit dem an ZnO gemessenen Spektrum überein; es treten jedoch deutliche quantitative Unterschiede auf.

8.3 Ausblick

Die phasenempfindliche Reflexionsmessung stellt insbesondere im Bereich des Brewsterwinkels eine Meßmethode dar, die sehr empfindlich kleine Veränderungen der dielektrischen Eigenschaften des Mediums detektiert. Da die "Sonde Exziton" ihrerseits wieder auf die Kristallstruktur, die Oberflächenbeschaffenheit (Streuung) und elektrische Felder (Stark-Effekt) reagiert, ist zu erwarten, daß durch solche Messungen das Verständnis exzitonischer Polaritonen in oberflächennahen Bereichen vertieft wird.

Insbesondere wäre ein Vergleich der Messungen mit Theorien wünschenswert, die auf eine translationsinvariante dielektrische Funktion verzichten /8. 4/ oder die auf dem mikroskopischen Verhalten der Exzitonen an der Oberfläche aufbauen /8.15/, /8.16/.

Zusammenfassung

In der vorliegenden Arbeit wird das resonante Verhalten exzitonischer Polaritonen in hexagonalen ZnO Einkristallen untersucht.

Für den niedrigsten angeregten Exzitonenzustand $n=1$ wurde die spektrale Abhängigkeit des Reflexionskoeffizienten und der Phasendifferenz zwischen s- und p-polarisierter Komponente der reflektierten Lichtwelle bei verschiedenen Einfallswinkeln ($T=4.2\text{K}$) gemessen.

Die gemessenen Phasen- und Reflexionsspektren wurden mit dem Thomas-Hopfield-Modell verglichen, einem Oszillatormodell für die dielektrische Funktion, das räumliche Dispersion und eine exzitonenfremde Randschicht zuläßt, und das in den dielektrischen Tensor des uniaxialen Kristalls eingebettet wurde.

Der Einfluß verschiedener Parameter auf die Struktur von Reflexions- und Phasenspektren wird diskutiert.

Die Spektren von A,B- und C-Exziton konnten für verschiedene Kristallorientierungen und Polarisationsrichtungen mit dem selben Satz von Fitparametern (Dicke der exzitonenfremden Randschicht, phänomenologische Dämpfung der Exzitonen) angepaßt werden. Mit zunehmendem Einfallswinkel mußten höhere Schichtdicken und größere Dämpfungen gewählt werden. Der Anteil von durch Streuung depolarisiertem Licht steigt steil mit wachsendem Einfallswinkel an.

Für alle Einfallswinkel gelingt die Anpassung der Phasenspektren besser als der Reflexionsspektren. Insgesamt ist die Übereinstimmung zwischen gemessenen und nach dem Thomas-Hopfield-Modell berechneten Phasen- und Reflexionsspektren gut.

Bei großen Winkeln ($\alpha = 65^\circ, 70^\circ$) wurde im Phasenspektrum auf der kurzwelligen Seite ein Brewstereffekt (Verschwinden der Phasendifferenz zwischen s- und p-Komponente der reflektierten Welle) beobachtet.

Die Ergebnisse stehen im Einklang mit den Experimenten an ZnP_2 , ZnTe , ZnSe , CdSe , CdS , und AgI .

Literaturverzeichnis

- /1.1 / J.J.Hopfield, D.G.Thomas
Phys. Rev. 132, 653 (1963)
- /1.2 / S.I.Pekar
Sov.Phys.JETP 6, 785 (1958)
- /1.3 / M.S.Brodin, S.I.Pekar
Sov.Phys.JETP 11, 55, 1373 (1960)
- /1.4 / F.Garcia-Moliner, F.Flores
J.Phys. 38, 851 (1977)
- /1.5 / P.Halevi, R.Fuchs
Proc.XIV Int.Conf.Phys.Semicond. Edinburgh,
863 (1978)
- /1.6 / R.Zeyher, J.L.Birman, W.Brenig
Phys. Rev. B6, 4613 (1977)
- /1.7 / I.Broser, M.Rosenzweig
Phys.stat.sol.(b) 95, 141 (1979)
- /1.8 / D.L.Johnson, P.R.Rimbey
Phys.Rev.B14, 2398 (1976)
- /1.9 / S.Sakoda
J.Phys.Soc.Japan 40, 152 (1976)
- /1.10/ F.Evangelisti, A.Frova, F.Patella
Phys.Rev.B10, 4253 (1974)
- /1.11/ L.Schultheis
Dissertation Stuttgart 1983
- /1.12/ D.D.Sell, S.E.Stokowsky, R.Dingle, J.V.Di Lorenzo
Phys.Rev.B7, 4568 (1973)
- /1.13/ R.G.Ulbrich, C.Weisbuch
Phys.Rev.Lett. 38, 856 (1977)
- /1.14/ M.Mita, K.Sotome, M.Ueta
Solid State Comm. 33, 1135 (1980)
- /1.15/ S.A.Permogorov, A.V.Selkin, V.V.Travnikov
Sov.Phys.Sol.State 15, 1215 (1973)

- /1.16/ J.Lagois, K.Hümmer
phys.stat.sol(b) 72, 393 (1975)
- /1.17/ L. Schultheis, I.Balslev
Phys.Rev.B28, 2292 (1983)
- /1.18/ A.B.Pevtsov, A.V.Selkin
Sov.Phys.JETP 56, 282 (1982)
- /1.19/ E.L.Ivchenko in:
Modern Problems in Condensed Matter Science vol.2
ed.E.I.Rashba, M.D.Sturge
North Holland Amsterdam 1982
- /1.20/ E.L.Ivchenko, S.A.Permogorov, A.V.Selkin
JETP Lett. 28, 599 (1978)
- /2.1 / J.O.Dimmock in:
Semiconductors and Semimetals vol.3
Willardson, Beer, New York 1967
- /2.2/ G.F.Koster, J.O.Dimmock, R.G.Wheeler, H.Statz
Properties of the Thirty-Two Point Group
M.I.T. Press, Cambridge 1963
- /2.3 / T.Skettrup, I.Balslev
phys.stat.sol. 40, 93 (1970)
- /2.4 / J.J.Hopfield, D.G.Thomas
Phys.Rev.132,653 (1963)
- /2.5 / K.Schumann
Diplomarbeit Erlangen 1979
- /2.6 / G.Dresselhaus
Phys.Rev. 100, 580 (1955)
- /2.7 / G.E.Pikus, G.L.Bir
Sov.Phys.Semicond. 7, 81 (1973)
- /2.8 / R.Kuhnert, R.Helbig
phys.stat.sol.(b) 107, 83 (1981)
- /2.9 / J.Lagois
Phys.Rev.B 16, 1699 (1977)
- /2.10/ R.Helbig
Habilitationsschrift Erlangen 1976

- /3.1 / V.M.Agranovich, V.L.Ginzburg
Spatial Dispersion and the Theory of Excitons
Wiley, New York 1966
- /3.2 / K.Hümmer
Habilitationsschrift Erlangen 1978
- /3.3 / S.I.Pekar
Sov.Phys.JETP 6, 785 (1958)
- /3.4 / J.J.Hopfield, D.G.Thomas
Phys.Rev. 132, 563 (1963)
- /3.5 / A.Stahl
phys.stat.sol.(b) 106, 575 (1981)
- /3.6 / M.Born
Optik 3.Auflage Springer Berlin 1972
- /3.7 / J.Nye
Physical Properties of Crystals
Oxford University Press 1972
- /3.8 / J.J.Hopfield, D.G.Thomas
J.Phys.Chem.Sol. 12, 276 (1960)
- /3.9 / K.Hümmer, P.Gebhardt
phys.stat.sol.(b) 86 (1978)

- /4.1 / J.J.Hopfield, D.G.Thomas
Phys.Rev. 124, 657 (1961)
- /4.2 / F.Garcia-Moliner, F.Flores
J.Phys. 38, 851 (1977)
- /4.3 / S.I.Pekar
Sov.Phys.JETP 6, 785 (1958)
- /4.4 / A.A.Maradudin, D.L.Mills
Phys. Rev.B7, 2787 (1973)
- /4.5 / R.Zeyher, J.L.Birman, W.Brenig
Phys.Rev.B6, 4613 (1977)
- /4.6 / D.L.Johnson, P.R.Rimbey
Phys.Rev.B14, 2398 (1976)

- /4.7 / S.Sakoda
J.Phys.Soc.Japan 40, 152 (1976)
- /4.8 / A.D'Andrea, R.Del Sole
Solid State Comm.30, 145 (1979)
- /4.9 / H.Wolter in:
Handbuch der Physik XXIV Hrsg. S.Flügge Berlin 1956
- /4.10/ R.Zeyher, J.L.Birman, W.Brenig
Phys.Rev.B6, 4613 (1972)
- /4.11/ A.Stahl
phys.stat.sol.(b) 94, 221 (1981)
- /4.12/ T.Skettrup
phys.stat.sol.(b) 60, 695 (1973)
- /4.13/ J.Lagois
Dissertation Stuttgart 1976
- /4.14/ M.Born
Optik 3.Auflage Berlin 1972
- /4.15/ I.Broser, M.Rosenzweig, R.Broser, M.Richard, E.Birkicht
phys.stat.sol.(b) 90, 77 (1978)
- /4.16/ D.D.Sell, S.E.Stokowsky, R.Dingle, J.V.DiLorenzo
Phys.Rev.B7, 4568 (1973)
- /4.17/ I.Munder, R.Helbig, J.Lagois
Solid State Comm. 41, 553 (1982)
- /4.18/ F.Abelès in:
M.Born, E.Wolf Principles of Optics Pergamon Press 1964
- /4.19/ A.B.Pevtsov, A.V.Selkin
Sov.Phys.Solid State 23, 1644 (1981)
- /4.20/ A.B.Pevtov, A.V.Selkin
Sov.Phys.JETP 56, 282 (1982)
- /4.21/ R.W.Pohl
Optik und Atomphysik 9.Aufl. Springer Berlin 1954

- /5.1 / R.M.A.Azzam, N.M.Bashara
Ellipsometry and Polarized Light
Norht Holland Amsterdam 1977
- /5.2 / P.Drude
Ann.Phys.Chem. 36, 532, 865 (1889)
- /5.3 / R.H.W.Graves
J.Opt.Soc.Am. 59, 1225 (1969)
- /5.4 / P.M.Law, D.Beaglehole
J.Phys. D, 115 (1981)
- /5.5 / M.Born, E.Wolf
Principles of Optics Pergamon Press 1964
- /5.6 / R.C.Jones
J.Opt.Soc.Am. 31, 488 (1941)
- /5.7 / H.Poincaré in
Handbuch der Physik XXV
Hrsg. S.Flügge Springer Berlin 1961
- /5.8 / E.Hecht, A.Zajac
Optics Addison Wesley Reading 1974
- /5.9 / D.E.Aspnes
Optics Comm. 8, 222 (1973)
- /6.1 / D.E.Aspnes
J.Opt.Soc.Am. 64, 812 (1974)
- /6.2 / Y.S.Park, J.R.Schneider
J.Appl.Phys. 39, 3049 (1968)
- /6.3 / F.Kohlrausch
Praktische Physik 3 Teubner Stuttgart 1962
- /6.4 / H.S.Stewart, R.F.Hopfield in
Applied Optics and Optical Engineering I
Academic Press New York (1965)
- /6.5 / CODATA BULL. 11, 7 (1973)
- /6.6 / R:M:A: Azzam, N.M.Bashara
Ellipsometry and Polarized Light
North Hölland Amsterdam 1979

- /6.7 / E.Mollwo in:
Landolt-Börnstein III/17 6. ed. Springer, Berlin
- /6.8 / R.Helbig
J.Crystal Growth 15, 25 (1972)
- /6.9 / J.Lagois, K.Hümmer
phys.stat.sol.(b), 72, 393 (1975)
- /6.10/ U.Breymann
Elektronik 8, 82 (1981)
- /7.1 / J.Lagois
Phys.Rev.B 23, 5511 (1981)
- /7.2 / E.L.Ivchenko, S.A.Permogorov, A.V.Selkin
JETP Lett. 27, 24 (1978)
- /7.3 / E.L.Ivchenko, A.V.Selkin
Sov.Phys.JETP 49, 933 (1979)
- /7.4 / F.I.Fedorov
Optics and Spectroscopy 6, 237 (1959)
- /7.5 / F.I.Fedorov, B.V.Bokut, A.F.Konstantinova
Sov.Phys.Cryst. 7, 738 (1963)
- /7.6 / T.M.Mashlyatina, D.S.Nedzvetskii, A.V.Selkin
Jep Lett. 27, 539 (1978)
- /7.7 / M.Rosenzweig
Dissertation Berlin 1982
- /8.1 / K.Hümmer
phys.stat.sol.(b) 56, 249 (1973)
- /8.2 / A.B.Pevtsov, S.A. Permogorov, A.V.Selkin
JETP Lett. 33, 403 (1981)
- /8.3 / L.Tsang, J.A.Kong
J.Appl. Phys. 51, 673 (1980)
- /8.4 / L.Gotthard, A.Stahl, G.Czajkowski
J.Physics C 27, 4365 (1984)

- /8.5 / J.Lagois
Phys. Rev. B 23, 5511 (1981)
- /8.6 / S.Sakoda
J.Phys.Soc.Japan 40, 152 (1976)
- /8.7 / V.A.Kiselev
Sov.Phys.Solid State 20, 1255 (1978)
- /8.8 / L.Schultheis
Dissertation Stuttgart 1983
- /8.9 / A.V.Komaraov, S.M.Ryabchenko, M.I.Strashnikova
Sov.Phys.JETP 47, 128 (1978)
- /8.10/ A.B.Pevtsov, A.V.Selkin
Sov.Phys.Solid State 23, 1644 (1981)
- /8.11/ S.B.Moskovskii, L.E.Solovev, M.O.Chaika
Sov.Phys.Solid State 23, 2102 (1981)
- /8.12/ A.B.Pevtsov, S.A.Permogorov, S.R.Saifullaev, S.A.Selkin
Sov.Phys.Solid State 22, 1396 (1980)
- /8.13/ A.B.Pevtsov, A.V.Selkin
Sov.Phys.JETP 56, 282 (1982)
- /8.14/ T.M.Mashlyatina, D.S.Nedzvetskii, L.E.Solovev
Sov.Phys.Solid State 21, 11-6 (1979)
- /8.15/ A.D.D'Andrea, R.Del Sole
Solid State Comm. 30, 145 (1979)

Danksagung

Herrn Prof.Dr.M.Schulz danke ich für die guten Arbeitsmöglichkeiten, die ich im Institut für Angewandte Physik gefunden habe.

Herrn Prof.Dr.R.Helbig gilt mein Dank für die Anregung zu dieser Arbeit, sein Interesse an ihrem Fortgang und für klärende Diskussionen.

Bei Herrn Dr.J.Lagois möchte ich mich für die Überlassung der Rechnerprogramme und viele wertvolle Anregungen bedanken.

Herrn Prof.Dr.H.J.Queisser danke ich für die Arbeitsmöglichkeiten als Gast an seinem Institut.

Gedankt sei den Technischen Angestellten im Haus, den Herren Hinterhölzel, Götz und Hergenröder, ohne deren Hilfe diese Arbeit nicht möglich gewesen wäre.

Bei Frau Loy möchte ich mich für das Schreiben der Arbeit bedanken.

Die Deutsche Forschungsgemeinschaft hat diese Arbeit durch Leihgaben unterstützt.

Lebenslauf

Irmtraud Munder

verheiratet, 1 Tochter

28.1.1952	geboren in Stuttgart
4/57-4/61	Grundschule am Michelsberg in Ulm
4/61-2/69	Humboldt Gymnasium in Ulm
9/69-7/71	Ausbildung an der Schule für Medizinische Dokumentationsassistenten an der Universität Ulm
9/71-9/73	Tätigkeit als Programmiererin in der Sektion Neurophysiologie der Universität Ulm
9/72-6/74	Technische Oberschule in Ulm
26.6.1974	allgemeine Hochschulreife
WS74-SS76	Studium der Physik, Mathematik und Chemie an der Universität Ulm
5.10.1976	Diplomvorprüfung in Physik
ab WS 76	Studium der Physik an der Universität Erlangen
WS 78	Beginn der Diplomarbeit am Institut für Angewandte Physik der Universität Erlangen Thema: Untersuchung des Einflusses einer implantierten Oberflächenschicht auf das Reflexionsvermögen exzitonischer Polaritonen in ZnO
25.2.1981	Diplomhauptprüfung
ab 1.7.81	Wissenschaftliche Angestellte im Institut für Angewandte Physik der Universität Erlangen und Beginn der Doktorarbeit

